

COMPOSITION CONTAINING SILOXANE**Publication number:** JP2000044583**Publication date:** 2000-02-15**Inventor:** ANDO EIJI; YASUDA HIROFUMI; SHOJI HIROAKI;
SASAKI HISASHI**Applicant:** NIPPON UNICAR CO LTD**Classification:**

- international: *H01C1/02; C07F7/18; C08K9/06; C08L21/00;
C08L83/06; C08L83/07; C08L83/08; C08L101/00;
C09K3/10; H01F1/113; H01C1/02; C07F7/00;
C08K9/00; C08L21/00; C08L83/00; C08L101/00;
C09K3/10; H01F1/032; (IPC1-7): C07F7/18; C08K9/06;
C08L21/00; C08L83/06; C08L83/07; C08L83/08;
C08L101/00; C09K3/10; H01C1/02; H01F1/113*

- European:**Application number:** JP19980288818 19980925**Priority number(s):** JP19980288818 19980925; JP19980162978 19980527**Report a data error here****Abstract of JP2000044583**

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain an inorganic material which enhances a filling coefficient and dispersibility into organic materials, can enhance workability and moldability, can improve mechanical properties and water resistance, and is useful for synthetic resin magnets, etc., by treating the surface of siloxane having specific structure (or a hydrolyzate thereof). **SOLUTION:** This material is obtained by treating the surface of (A) an inorganic material with (B) a compound shown by formula I [R' and R'' are each a 1-20C (fluoro)alkyl, an aryl or an aralkyl; R is R', a 1-8C alkoxy, acetoxy or oxime group; X is vinyl, 3,4-epoxycyclohexyl, thiol group, isocyanate group or the like; Y is a 1-8C alkoxy, acetoxy or oxime group; (a) is 0-2; (b) is 0-20; (c) is 1-100] or a hydrolyzate thereof. Component B is obtained, for example, by reacting a compound shown by formula II with a compound shown by formula III [(n) is 3-8].

Data supplied from the esp@cenet database - Worldwide

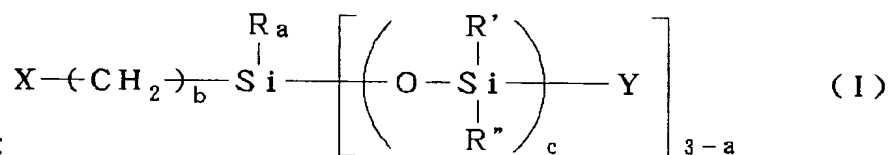
* NOTICES *

JPO and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

1. This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
2. **** shows the word which can not be translated.
3. In the drawings, any words are not translated.

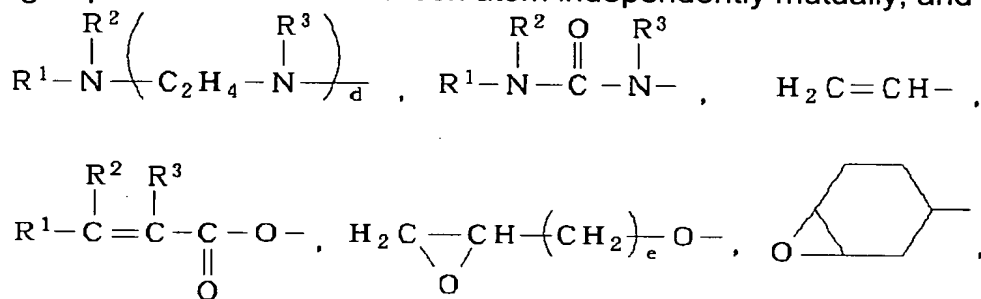
CLAIMS

[Claim(s)]



[Claim 1]The following formula I :

[a expresses an integer of 0 thru/or 2 among a formula, b expresses an integer of 0 thru/or 20, and c expresses an integer of 1 thru/or 100, Although R expresses an alkyl group with 1 thru/or 20 carbon atom, a fluoro alkyl group, an aryl group, an aralkyl group, an alkoxy group with 1 thru/or 8 carbon atom, an acetoxy group, or an oxime group, When two R exists, they may be the same or it may differ, and R' and R'' express an alkyl group, a fluoro alkyl group, an aryl group, or an aralkyl group with 1 thru/or 20 carbon atom independently mutually, and X is a



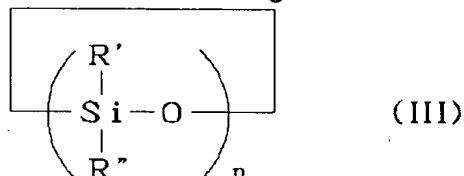
following formula. : $HS-$, $O=C=N-$

the inside of a formula, R^1 , R^2 , and R^3 -- mutual -- independently -- a hydrogen atom. An alkyl group, an aryl group, or an aralkyl group with 1 thru/or 10 carbon atom is expressed, and d and e -- mutual -- independently -- an integer of 0 thru/or 5 -- expressing -- a basis expressed, [express and] An inorganic material by which the surface treatment was carried out using at

least one sort of and a siloxane expressed with Y expressing an alkoxy group, an acetoxy group, or an oxime group with 1 thru/or 8 carbon atom], or its hydrolysis product.

[Claim 2]A siloxane is the following formula II. :
$$X-(CH_2)_b-\overset{\overset{R_a}{|}}{Si}-Y_{3-a} \quad (II)$$

A compound and the following formula III which are expressed with (a, b, R, X, and Y express the same meaning as a definition in claim 1 among a formula) :



The inorganic material according to claim 1 which is a polysiloxane obtained by a reaction with a compound expressed with (R' and R'' express the same meaning as a definition in claim 1, and n expresses an integer of 3 thru/or 8 among a formula) and by which the surface treatment was carried out.

[Claim 3]The inorganic material according to claim 1 or 2 whose siloxane is what either [at least] R or Y expresses an alkoxy group to among the above-mentioned formula I and by which the surface treatment was carried out.

[Claim 4]An inorganic material by which the surface treatment was carried out to any 1 paragraph of claims 1 thru/or 3 using a siloxane, hydrolytic basis content silane compounds, or those hydrolysis products of a statement.

[Claim 5]Magnetic substance powder by which the surface treatment was carried out to any 1 paragraph of claims 1 thru/or 3 using at least one sort of a siloxane of a statement, or its hydrolysis product.

[Claim 6]Magnetic substance powder by which the surface treatment was carried out to any 1 paragraph of claims 1 thru/or 3 using a siloxane, hydrolytic basis content silane compounds, or those hydrolysis products of a statement.

[Claim 7]A constituent which contains at least one sort of a siloxane of a statement, or its hydrolysis product, an inorganic material, and organic materials in any 1 paragraph of claims 1 thru/or 3.

[Claim 8]A constituent which contains a siloxane and hydrolytic basis content silane compounds or those hydrolysis products, an inorganic material, and organic materials of a statement in any 1 paragraph of claims 1 thru/or 3.

[Claim 9]A synthetic resin magnet material which contains at least one sort of a siloxane of a statement, or its hydrolysis product, magnetic substance powder, and a synthetic resin in any 1 paragraph of claims 1 thru/or 3.

[Claim 10]A synthetic resin magnet material which contains a siloxane and hydrolytic basis content silane compounds or those hydrolysis products, magnetic substance powder, and a synthetic resin of a statement in any 1 paragraph of claims 1 thru/or 3.

[Claim 11]A synthetic resin magnet produced by fabricating the synthetic resin magnet material according to claim 9 or 10.

[Claim 12]A rubber composition which contains at least one sort of a siloxane of a statement, or its hydrolysis product 0.01 to 30% of the weight to an inorganic filler in any 1 paragraph of claims 1 thru/or 3.

[Claim 13]A resin composition for sealing agents which contains at least one sort of a siloxane of a statement, or its hydrolysis product 0.01 to 30% of the weight to an inorganic filler in any 1 paragraph of claims 1 thru/or 3.

[Translation done.]

*** NOTICES ***

JP0 and INPIT are not responsible for any damages caused by the use of this translation.

- 1.This document has been translated by computer. So the translation may not reflect the original precisely.
- 2.**** shows the word which can not be translated.
- 3.In the drawings, any words are not translated.

DETAILED DESCRIPTION

[Detailed Description of the Invention]

[0001]

[Field of the Invention]The inorganic material by which this invention used together the siloxane independent or this siloxane which has specific structure in more detail about the constituent containing a siloxane, and the hydrolytic basis content silane compound, and the surface treatment was carried out, The constituent which consists of the combination, the inorganic material, and organic materials of magnetic substance powder and the above-mentioned siloxane independent or this siloxane, and a hydrolytic basis content silane compound especially, It is especially related with a synthetic resin magnet material (and synthetic resin magnet fabricated from this material), a rubber composition, or the resin composition for sealing agents.

[0002]

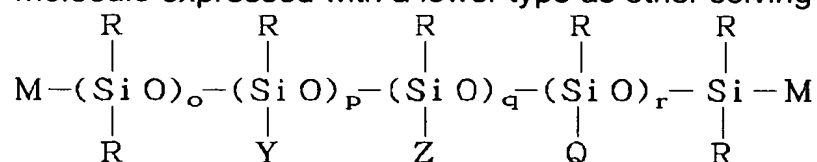
[Description of the Prior Art]a demand of as opposed to various materials in connection with remarkable development of recent years, engineering, and industry -- complication, diversification, and functionalization -- and it is becoming severe. Such a demand could not be satisfied with a single material in many cases, and development and use of the various composite materials which constituted two or more materials appropriately so that a material property might be revealed according to many demand characteristics have been performed. The fiberglass reinforced plastic (FRP) which consists of glass fiber and unsaturated polyester as a typical composite material is begun, Fiber reinforced thermoplastics (FRTP), artificial marble, a synthetic resin magnet, resin concrete, a sealing agent, a shell mold, rubber and an elastomer, magnetic tape, etc. are mentioned.

[0003]It is known for such a composite material that the quality of the state in the interface of organic materials and an inorganic material will affect the various characteristics of a composite material greatly. Generally the surface of an inorganic material is reformed using a

surface modifier, and the improvement of the wettability and the adhesive property of organic materials and an inorganic material is made. The coupling agent of the Silang system and a titanate system is generally used as this surface modifier. When it is an organic silane compound which has two or more sorts of different reaction groups, one reaction group reacts to the inorganic material surface and the reaction group of another side reacts to organic materials into the same molecule, these silane coupling agents, It not only reforms an inorganic material, but it has the operation which combines an inorganic material and organic materials. Therefore, it begins to use a silane coupling agent as a glass finish agent in fiber reinforced plastics, In the composite material which combined an inorganic material and organic materials, such as inorganic fillers, such as FRTP, artificial marble, a synthetic resin magnet, resin concrete, a sealing agent, a shell mold, rubber and an elastomer, and magnetic tape, or an inorganic substrate, it is used as an interface modifier. By furthermore using a silane coupling agent for a composite material, the big role is played in improvement and an improvement of the mechanical property of a composite material, an electrical property, a water resisting property, weatherability, an adhesive property, a processing moldability, etc. [0004]However, the operation effect of interface refining which a silane coupling agent has depending on the kind of inorganic material has a difference, and it is known that a silane coupling agent hardly takes effect to some inorganic materials. A silane coupling agent as an inorganic material which acts effectively For example, quartz, Natural silica, such as sand and a novaculite; Wet process silica, colloidal silica, Synthetic silica, such as silica aerogel; Kaolin, mica, talc, wollastonite, Hitoshi Ishiwata's natural silicate; Synthetic silicate; alumina, such as a calcium silicate and aluminum silicate, Metallic oxides, such as hydrated alumina, titanium oxide, a zinc oxide, iron oxide, and magnesium oxide; functional inorganic materials, such as magnetic powder of metal, such as aluminum, copper, and bronze, and other ferrite series, SmCo systems and NdFe systems, etc. are mentioned. On the other hand, a silane coupling agent does not act effectively or the operation effect as few inorganic materials, For example, carbonate, sulfate, sulfite salt, carbon black, etc. of alkaline-earth metals, such as calcium carbonate, magnesium carbonate, calcium sulfate, barium sulfate, and calcium sulfite, are mentioned.

[0005]In order to cancel the problem of a silane coupling agent which happens according to the kind of such an inorganic material, various means have so far been proposed. For example, in JP,3-17764,B, using together the organopolysiloxane which has an alkoxy group in a silane coupling agent is proposed. Although a few is effective at the point which cancels the fault which the silane coupling agent of the above [this] has, When a silane coupling agent and organopolysiloxane act on the surface of inorganic solid particles, even if the effect of one ingredient is acquired, the problem that the effect of the ingredient of another side is not fully acquired arises, and, as a result, it cannot be satisfied with fields, such as the mechanical

property of a composite material, a water resisting property, weatherability, an adhesive property, processability, and a processing moldability, enough. In JP,5-43696,A, use of the reactant organopolysiloxane which has a hydrolysis group and a reactive organic group in one molecule expressed with a lower type as other solving means is proposed. :



(The inside of a formula, Y= organic reactivity functional group, Z= condensation nature silyl alkyl group, Q= polyoxyalkylene group, R=H, a monovalent hydrocarbon group, an alkyl halide group, M=Y, Z, Q, R, o= 0-500, p, q, r= 0-200). Although this showed the effect of the grade which is a point which cancels the fault which the above mentioned silane coupling agent has, it became in what it can be satisfied with fields, such as the mechanical property of a composite material, a water resisting property, weatherability, an adhesive property, and a processing moldability, of enough like the above-mentioned means of an indication at JP,3-17764,B. In order to raise the mechanical property etc. of the composite material which consists of an inorganic material and organic materials, use of the silane coupling agent was performed, but in order to make the mobility at the time of the improvement in toughness, such as flexural strength, and manufacture of a composite material give further, various proposals, such as use of lubricant, have been made. For example, in JP,6-89219,B, carrying out glycerin treatment to the glass fiber which carried out silane coupling agent treatment is proposed. Although improvement in processing moldabilities, such as improvement in toughness, such as flexural strength, and spiral flow, was accepted by this means, the phenomenon of down stream processing increasing and working efficiency falling, being easy to start interlaminar peeling since the wettability to an inorganic material is bad, and depositing on the surface had arisen. Since the working temperature at the time of shaping had been rising, glycerin volatilized and decomposed and there was a problem of a void etc. occurring in a molding material in recent years. Although the method of using together a silane coupling agent and poly dimethylsiloxane is indicated to JP,60-223859,A, Viscosity was more than at least 2000-mm²/s (cSt), and the poly dimethylsiloxane which is easy to start interlaminar peeling since poly dimethylsiloxane has the bad compatibility to a synthetic resin, and is moreover used was difficult handling. In order to raise dissolution and the effect acquired of the fault which the conventional silane coupling agent mentioned above under this situation has, Are effective also to the inorganic material in which an effect is not acquired in the conventional silane coupling agent, The appearance of the processing agent which the improvement effect of mechanical properties, such as toughness, and a processing moldability can satisfy enough

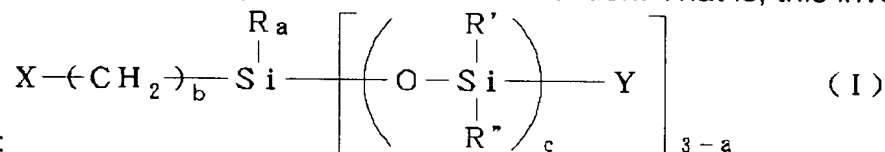
And FRP, It was wished in the field which manufactures and uses composite materials, such as FRTP, artificial marble, a synthetic resin magnet, resin concrete, a shell mold, an elastomer, magnetic tape, a rubber composition, and a sealing agent.

[0006]

[Problem(s) to be Solved by the Invention]The purpose of this invention is to provide the siloxane which has effective specific structure also to the inorganic material in which an effect was not acquired in the conventional silane coupling agent, It is in providing the inorganic material processed by the siloxane with the specific structure toughness, such as the mechanical property of the composite material produced by fabricating, especially flexural strength, a water resisting property, and whose weatherability whose processing moldability improves at the time of composite material manufacture, and improve, and the constituent containing this siloxane. FRP, FRTP, artificial marble, a synthetic resin magnet, resin concrete, It also sets it as the purpose of this invention to provide the composite material which uses the very useful above-mentioned siloxane for the use of composite materials, such as a shell mold, an elastomer, and magnetic tape, especially a synthetic resin magnet, a rubber composition, a sealing agent, etc.

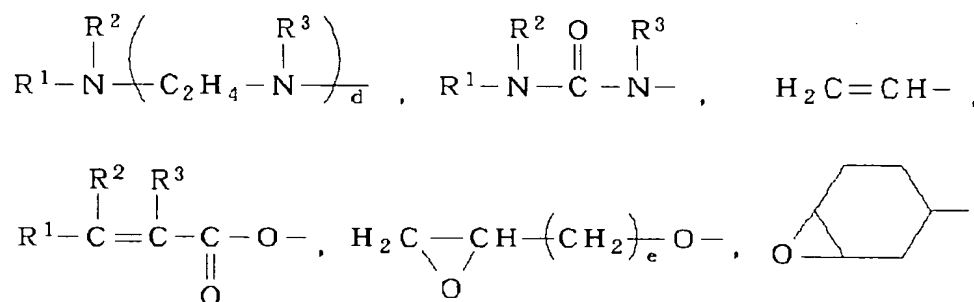
[0007]

[Means for Solving the Problem]Wholeheartedly, as a result of research, by using a siloxane which has specific structure, this invention persons find out that an aforementioned problem is solvable, repeat examination further, and result in this invention. That is, this invention is the



following formula I.:

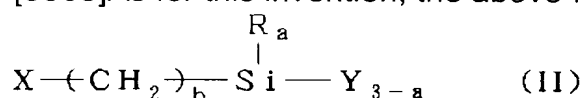
[a expresses an integer of 0 thru/or 2 among a formula, b expresses an integer of 0 thru/or 20, and c expresses an integer of 1 thru/or 100, Although R expresses an alkyl group with 1 thru/or 20 carbon atom, a fluoro alkyl group, an aryl group, an aralkyl group, an alkoxy group with 1 thru/or 8 carbon atom, an acetoxy group, or an oxime group, When two R exists, they may be the same or it may differ, and R' and R'' express an alkyl group, a fluoro alkyl group, an aryl group, or an aralkyl group with 1 thru/or 20 carbon atom independently mutually, and X is a



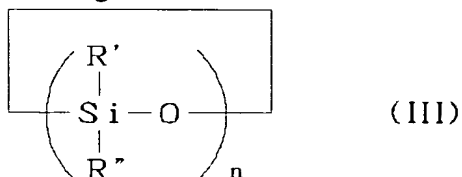
following formula. : $\text{HS}-$, $\text{O}=\text{C}=\text{N}-$

the inside of a formula, R^1 , R^2 , and R^3 -- mutual -- independently -- a hydrogen atom. An alkyl group, an aryl group, or an aralkyl group with 1 thru/or 10 carbon atom is expressed, and d and e -- mutual -- independently -- an integer of 0 thru/or 5 -- expressing -- a basis expressed, [express and] It is related with an inorganic material by which the surface treatment was carried out using at least one sort of and a siloxane expressed with Y expressing an alkoxy group, an acetoxy group, or an oxime group with 1 thru/or 8 carbon atom], or its hydrolysis product.

[0008]As for this invention, the above-mentioned siloxane is the following formula II again. :



A compound and the following formula III which are expressed with (a , b , R , X , and Y express among a formula the same meaning as what was defined by top) :



. [whether it is a polysiloxane obtained by a reaction with a compound expressed with (R' and R'' express the same meaning as what was defined by top, and n expresses an integer of 3 thru/or 8 among a formula), and] Or either [at least] R or Y is related with an inorganic material of the above which is a siloxane showing an alkoxy group by which the surface treatment was carried out among the above-mentioned formula I. This invention relates to an inorganic material by which the surface treatment was carried out using a siloxane, hydrolytic basis content silane compounds, or those hydrolysis products of one of the above. Magnetic substance powder in which the surface treatment (indicated also as surface treatment) of this invention was carried out again using at least one sort of a siloxane of one of the above, or its hydrolysis product, And it is related with magnetic substance powder by which the surface

treatment was carried out using a siloxane, hydrolytic basis content silane compounds, or those hydrolysis products of one of the above. This invention A siloxane of one of the above, or at least one sort of the hydrolysis product, It is related with a constituent containing a constituent containing an inorganic material and organic materials, a siloxane of one of the above and hydrolytic basis content silane compounds or those hydrolysis products, an inorganic material, and organic materials. This invention A siloxane of one of the above, or at least one sort of the hydrolysis product, A siloxane and hydrolytic basis content silane compounds, or those hydrolysis products of a synthetic resin magnet material containing magnetic substance powder and a synthetic resin, and one of the above, It is related with a synthetic resin magnet material containing magnetic substance powder and a synthetic resin, and a synthetic resin magnet produced by fabricating a synthetic resin magnet material of one of the above further. A rubber composition in which this invention contains at least one sort of the above-mentioned siloxane or its hydrolysis product 0.01 to 30% of the weight to an inorganic filler further, And it is related with a resin composition for sealing agents which contains at least one sort of the above-mentioned siloxane or its hydrolysis product 0.01 to 30% of the weight to an inorganic filler.

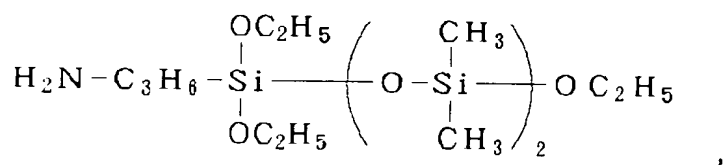
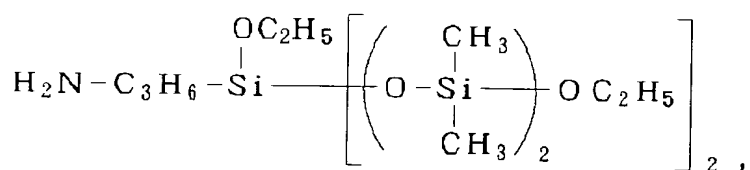
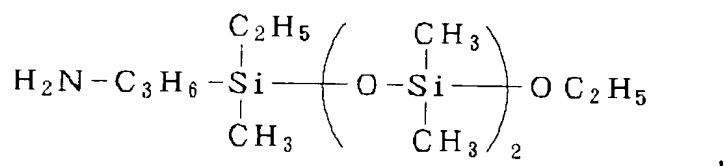
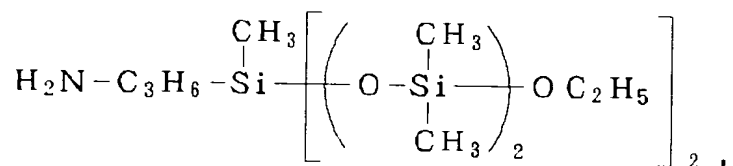
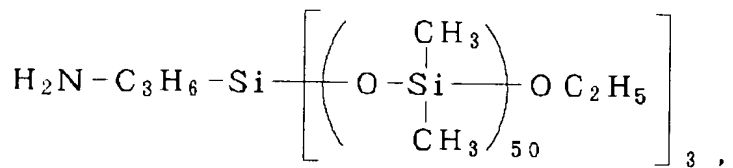
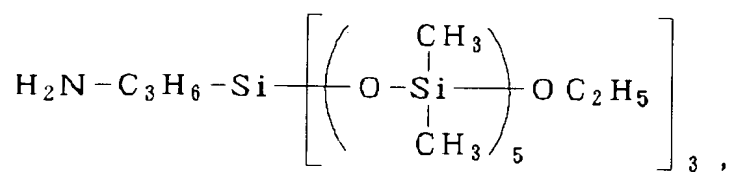
[0009]

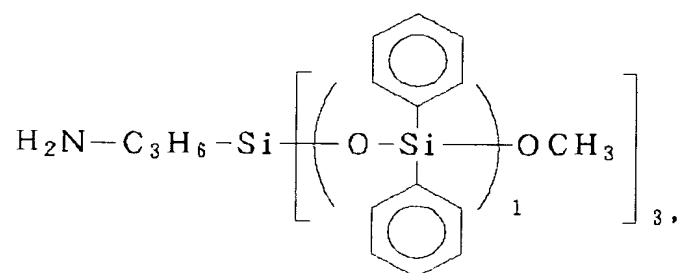
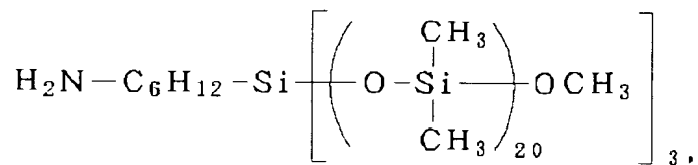
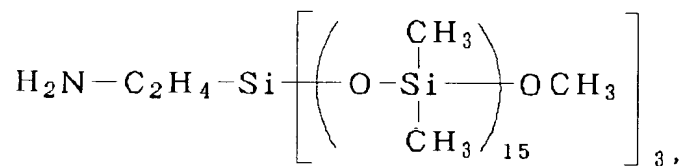
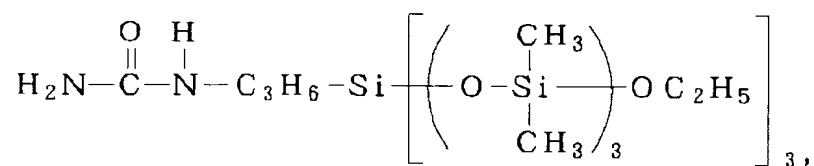
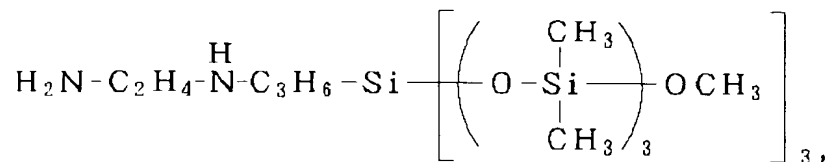
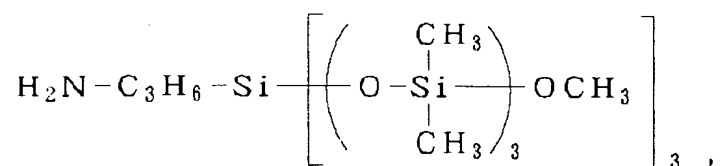
[Embodiment of the Invention]The siloxane used in this invention is a compound expressed with the above-mentioned formula I. Each substituent in the formula I is explained below. R An alkyl group with 1 thru/or 20 carbon atom, for example, a methyl group, an ethyl group, A propyl group, an isopropyl group, a butyl group, the second butyl group, a tertiary butyl group, A pentyl group, a neopentyl group, a hexyl group, an octyl group, a nonyl group, A decyl group, the dodecyl, an octadecyl group, icosyl groups, or those isomers; A fluoro alkyl group, As the above-mentioned alkyl group replaced with at least one fluorine atom, and an example, for example, $-C_2H_4CF_3$, $C_2H_4CF_2CF_3$ etc.; -An aryl group, For example, a phenyl group, a tolyl group, a xylyl group, a naphthyl group, etc.; An aralkyl group, For example, benzyl, a phenethyl group, a phenylpropyl group, etc.; An alkoxy group with 1 thru/or 8 carbon atom, For example, a methoxy group, an ethoxy basis, a propoxy group, an isopropoxy group, a butoxy group, an isobutoxy group, the third butoxy group, a pentoxy group, a HEKISOKISHI group, an octoxy group; an acetoxo group or an oxime group It is by [Following formula : $R_1R_2C=NO$ Basis expressed with - (R_1 and R_2 express a hydrogen atom or the above-mentioned alkyl group independently mutually among a formula)]. a -- the integer of 0 thru/or 2, and b -- 0 thru/or 20 -- desirable -- 0 thru/or 6 -- especially -- desirable -- the integer of 2 or 3, and c -- 1 thru/or 100 -- desirable -- 1 thru/or 50 -- it is an integer of 1 thru/or 10 especially preferably. When a is 2, two R may be the same or may differ. Mutually, R' and R'' are alkyl groups, fluoro alkyl groups, aryl groups, or aralkyl groups with 1 thru/or 20 carbon atom independently, and can mention what

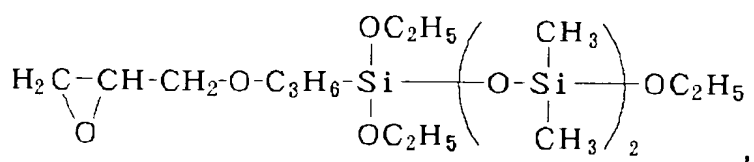
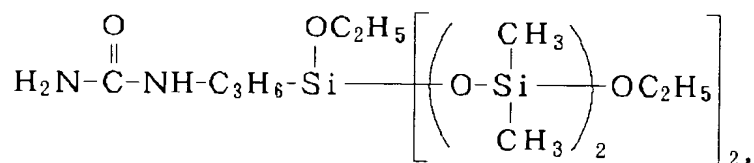
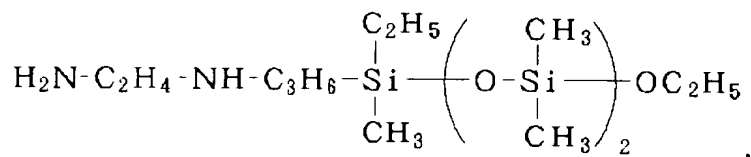
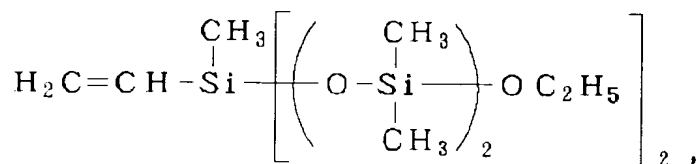
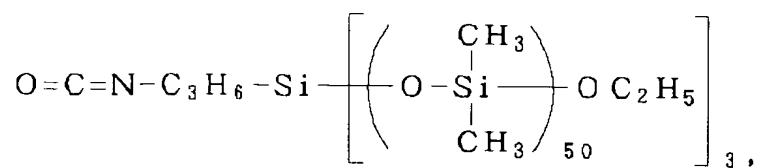
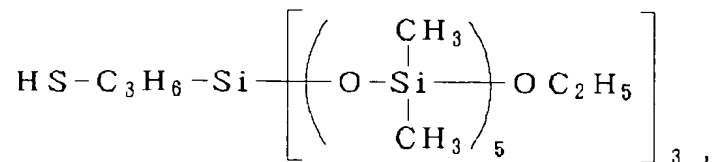
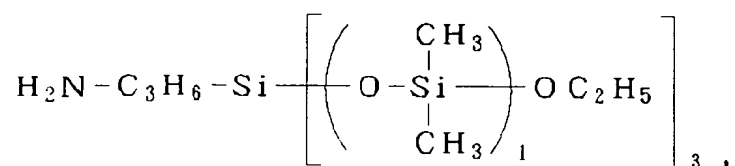
each illustrated to R as an example. X is specifically a vinyl group, an amino group, a diamino group, a triamino group, an ureido group, an acrylic group, an methacrylic group, an epoxy group, an annular epoxy group, a sulfhydryl group, or an isocyanate group. Y is an alkoxy group, an acetoxy group, or an oxime group with 1 thru/or 8 carbon atom, and can mention what each illustrated to R as an example.

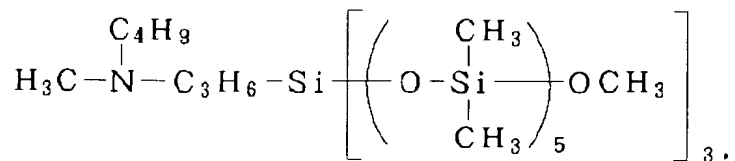
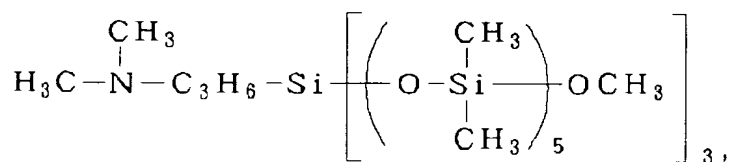
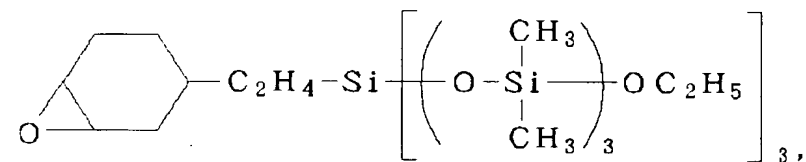
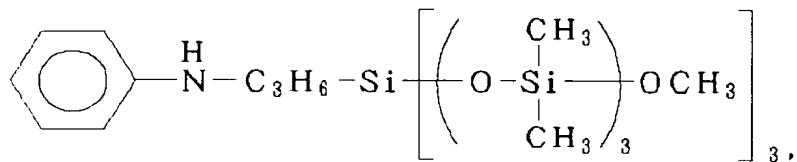
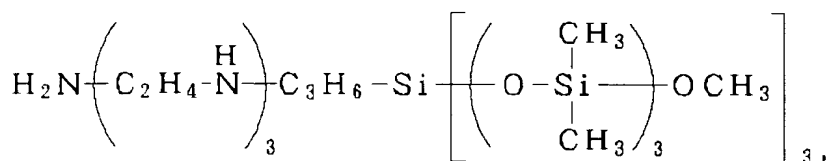
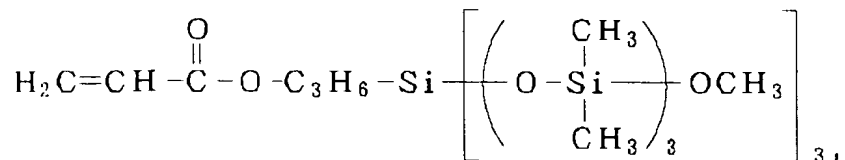
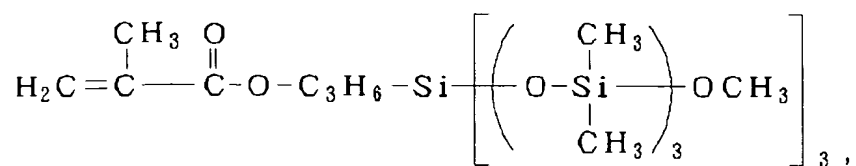
[0010]The number of the siloxane groups (-Si-O-) in the siloxane expressed with the above-mentioned formula I is decided by the value of c. When the physical properties of this siloxane are taken into consideration, the value of c is an integer of 1 thru/or 100, as described above. Since handling nature not only worsens, but the molecular weight of a siloxane becomes large, and serves as hyperviscosity and the translatability on the surface of an inorganic material will worsen if the value of c is too large, it is not desirable. As for the siloxane used in this invention, it is desirable to have at least one alkoxy group in one molecule. When the mechanical strength of the composite material obtained especially is taken into consideration, existence of two or more alkoxy groups is preferred in one molecule. When there are few alkoxy groups, since reactivity with an inorganic material worsens and the dispersibility in an inorganic material moreover falls, it is not desirable.

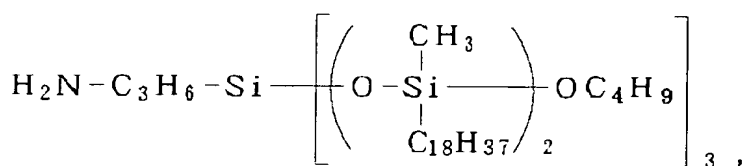
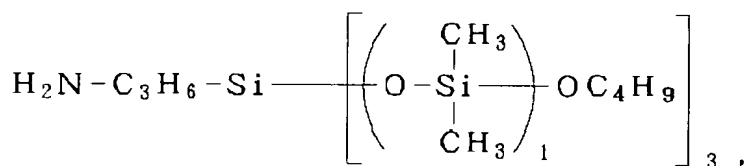
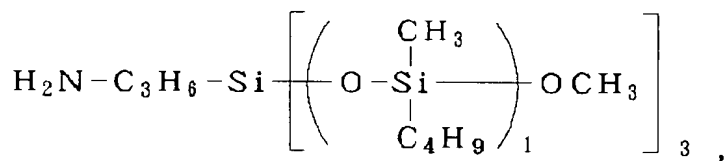
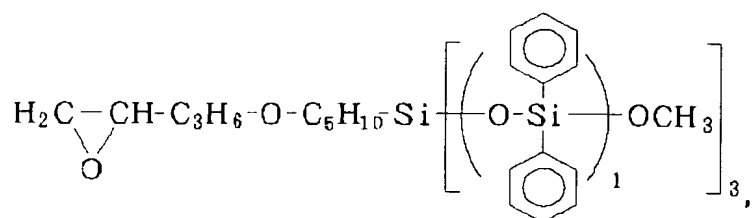
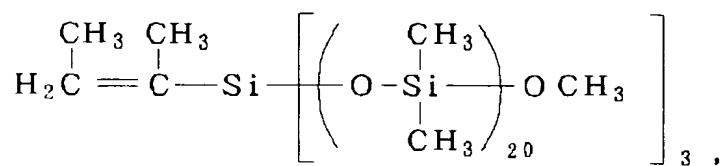
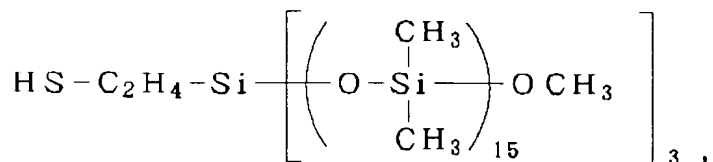
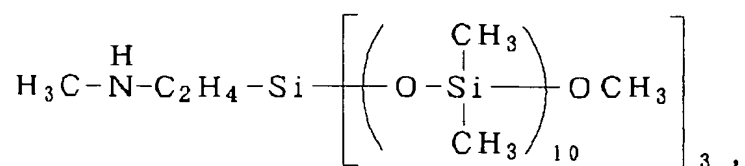
[0011]Although the following can be mentioned as an example of a siloxane expressed with the above-mentioned formula I, this invention is not limited to these. :

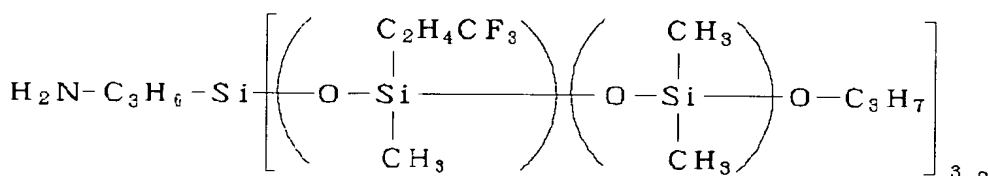
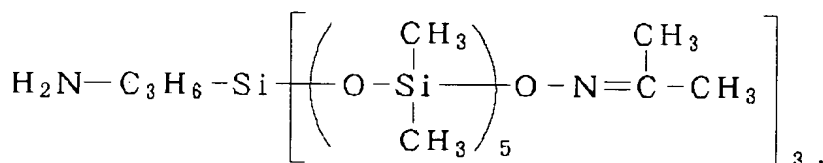
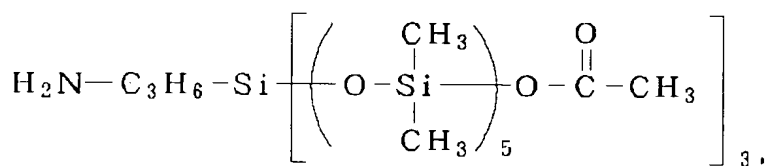
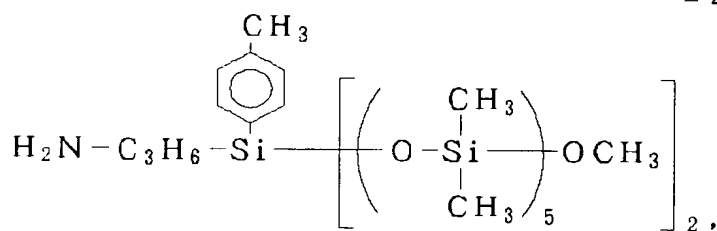
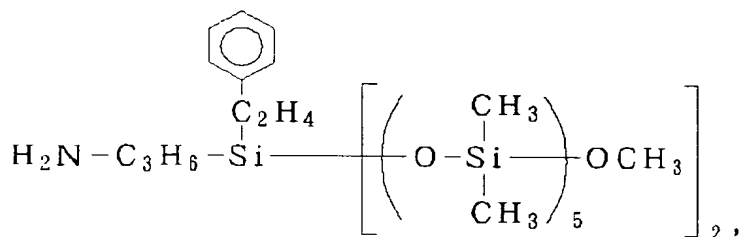
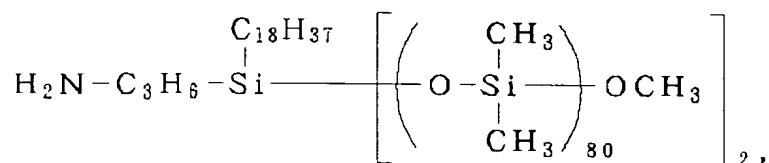
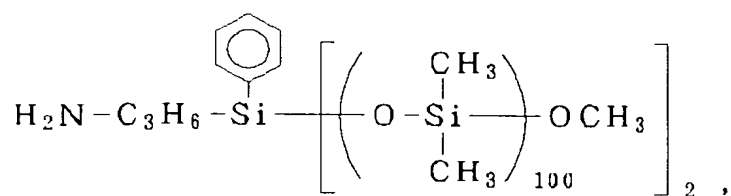












[0012]The siloxane of the specific structure expressed with the formula I used in this invention, Although it can manufacture by various methods and the method in particular is not limited, it can manufacture by making the compound expressed with the above-mentioned formula II, for example, and the compound expressed with the above-mentioned formula III react under existence of an alkaline compound or an acidic compound.

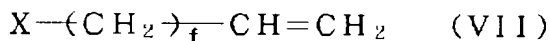
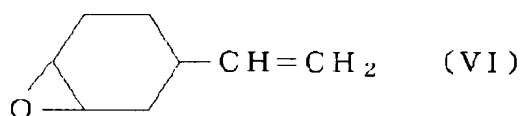
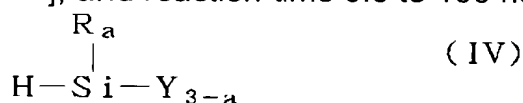
[0013]The compound expressed with the above-mentioned formula II is a publicly known compound, and the examples of each substituent are enumerated to the formula I. As an example of a compound expressed with the formula II, vinyltrimetoxysilane, Vinyltriethoxysilane, vinylmethyldimethoxysilane, gamma-aminopropyl triethoxysilane, gamma-aminopropyl trimethoxysilane, gamma-aminopropyl methyldiethoxysilane, N-(beta-aminoethyl)-gamma-aminopropyl trimethoxysilane, N-(beta-aminoethyl)-gamma-aminopropyl methyl dimethoxysilane, N-phenylamino propyltrimethoxysilane and N- (beta-aminoethyl N'-(gamma-trimethoxysilylpropyl) ethylenediamine.) gamma-ureido propyl triethoxysilane, gamma-mercapto propyltrimethoxysilane, gamma-mercaptopropyl triethoxysilane, gamma-methacryloxypropyl trimethoxy silane, gamma-methacryloxypropyl triethoxysilane, gamma-methacryloxypropylmethyldimethoxysilane, gamma-isocyanate propyltrimethoxysilane, gamma-isocyanatepropyl triethoxysilane, etc. can be mentioned.

[0014]The compound expressed with the formula III which is another raw material for manufacturing the siloxane in this invention is an annular polysiloxane of the degrees of polymerization 3-8, and this is also a publicly known compound. What was illustrated to R as an example of R' and R" can be mentioned among the formula III. As an example of a compound expressed with the formula III; 1,1,3,3,5,5-hexamethyl cyclotrisiloxane, 1,1,3, 3,5,5 and 7, 7-octamethylcyclotetrasiloxane, 1,1,3,3,5,5,7,7-octaethyl cyclotetrasiloxane, 1, 3, 5, the 7-tetraethyl 1, 3, and 5, 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane, 1,3,5,7-tetramethyl 1,3,5,7-tetraphenyl cyclotetrasiloxane, The 1,3,5,7-tetrabenzyl- 1, 3, and 5, 7-tetramethyl cyclotetrasiloxane, 1,1,3,3,5,5,7,7,9, a 9,11,11-dodecamethyl cyclohexa siloxane, 1,1,3,3,5,5,7, a 7,9,9,11,11,13,13-tetradeca MECHIRUSHIKURO hepta siloxane, 1,1,3,3,5,5,7 and 7,9,9,11,11,13,13, a 15,15-hexadeca MECHIRUSHIKURO octa siloxane, etc. can be mentioned.

[0015]As an alkaline compound used when making the compound expressed with the formula II, and the compound expressed with the formula III react, Sodium hydroxide, a potassium hydrate, sodium methoxide, a sodium ethoxide, tetramethylammonium hydroxide, tetra-n-butyl phosphonium hydroxide, etc. are mentioned. As an example of an acidic compound, sulfuric acid, chloride, phosphoric acid, activated clay, ferric chloride, etc. are mentioned. Especially if it is the conditions usually adopted as a reaction condition in this case, will not be limited, but. For example, when using a potassium hydrate, reaction temperature [of 90 thru/or 150 **] and reaction-time 3 thru/or 24 hours are desirable, and when using sulfuric acid, reaction temperature [of 0-40 **] and reaction-time 0.5 to 12 hours are desirable. When the alkaline above-mentioned compound or an acidic compound pushes the above-mentioned reaction, it needs existence of a constant rate, but as for the amount used, 0.001 thru/or about 10 % of the weight is desirable to the total quantity of the compound expressed with the formula II, and the compound expressed with the formula III.

[0016]The resultant of the compound expressed with the formula II and the compound expressed with the formula III is refined in accordance with a conventional method after ending reaction. That is, the residue of the alkaline above-mentioned compound or an acidic compound is neutralized, and the generated salt is filtered, or it decomposes thermally, and removes by the method of distilling off a decomposition product under decompression. An unreacted raw material is distilled off if needed.

[0017]The siloxane in this invention can be manufactured by the following process besides the above-mentioned example of a process. For example, it can manufacture by carrying out the addition reaction of the compound expressed with the output acquired by performing said reaction using the compound expressed with the above-mentioned formula III and the lower type IV, and lower type V-VII under existence of a catalyst in reaction temperature [of 10-150 **], and reaction-time 0.5 to 100 hours.



(R, X, Y, and a express among a formula the same meaning as what the top defined, and f expresses the integer of 0-18). Although allyl glycidyl ether, allyl methacrylate, allyl acrylate, etc. can be mentioned as an example of a compound expressed with the formula VII which is one of the compounds used for the above-mentioned process, it is not limited to them. As the above-mentioned catalyst, the 8th fellows' transition metals, those compounds, or complexes, such as nickel, Rh, Pd, and Pt, can be used. Since the platinum catalyst of chloroplatinic acid etc. can obtain comparatively cheaply, it is preferred to use this.

[0018]The hydrolytic basis content silane compound which may be used with the above-mentioned new siloxane in hydrolytic basis content silane compound this invention can generally use what is marketed widely as a silane coupling agent. For example, vinyltrimethoxysilane, vinyltriethoxysilane, vinylmethyldimethoxysilane, Vinyltris (methoxyethoxy) Silang, gamma-aminopropyl triethoxysilane, gamma-aminopropyl trimethoxysilane, gamma-aminopropyl methyldiethoxysilane, N-(beta-aminoethyl)-gamma-aminopropyl trimethoxysilane, N-(beta-aminoethyl)-gamma-aminopropyl methyl dimethoxysilane, N-phenylamino propyltrimethoxysilane, N-(beta-aminoethyl)-N'-(gamma-

trimethoxysilylpropyl) ethylenediamine, gamma-ureido propyl triethoxysilane, gamma-mercaptopropyltrimethoxysilane, gamma-mercaptopropyl triethoxysilane, gamma-methacryloxypropyl trimethoxy silane, gamma-methacryloxypropyl triethoxysilane, gamma-methacryloxypropylmethyldimethoxysilane, beta-(3, 4-epoxycyclohexyl) ethyltrimethoxysilane, beta-(3, 4-epoxycyclohexyl) ethyltriethoxysilane, gamma-glycidoxypropyltrimethoxysilane, gamma-glycidoxy propyltriethoxysilane, gamma-glycidoxy propyl methyldimethoxysilane, gamma-glycidoxypropylmethyldiethoxysilane, gamma-isocyanate propyltrimethoxysilane, gamma-isocyanatepropyl triethoxysilane, etc. are mentioned. Bis(3-triethoxy silyl propyl) tetrasulfane, Bis(3-trimethoxysilylpropyl)tetrasulfane, bis(3-triethoxy silyl propyl)disulfane, Bis(3-trimethoxysilylpropyl)disulfane, bis(3-triethoxy silyl propyl)amine, bis(3-trimethoxysilylpropyl)amine, a N,N'-screw [3-(trimethoxysilyl) propyl] Ethylenediamine, a N,N'-screw [3-(triethoxy silyl) propyl] It is usable in ethylenediamine etc. Although it does not have the reactivity with organic materials, alkoxysilane with the functional group of compatibility is also effective. As a concrete example, for example Methyl triethoxysilane, methyl trimethoxysilane, n-propyltrimethoxysilane, n-propyl triethoxysilane, n-hexyl triethoxysilane, n-hexyl trimethoxysilane, n-octyl trimethoxysilane, n-octyl triethoxysilane, Phenyltrimethoxysilane, phenyltriethoxysilane, polyether denaturation trimethoxysilane, Polyether denaturation triethoxysilane, 1,3,5-N-tris (trimethoxysilylpropyl) isocyanurate, dimethyldimethoxysilane, dimethyl diethoxysilane, diphenyldimethoxysilane, diphenyl diethoxysilane, etc. are mentioned. The above-mentioned hydrolytic basis content silane compound is suitably chosen by the kind of the synthetic resin which is organic materials used, or elastomer.

[0019]In hydrolysis product this invention, with a hydrolysis product. The siloxane or this siloxane, and hydrolytic basis content silane compound which are expressed with the formula I of this invention, Adding water in the solvent which is mainly concerned with lower alcohol, for example, methanol, ethanol, isopropanol, butanol, etc. under existence of a small amount of acid catalysts, for example, acetic acid, sulfuric acid, or chloride. An alkoxy group etc. are hydrolyzed and what was used as the silicone compound which has the hydroxyl group combined with the silicon atom is meant. Dehydration condensation of some hydroxyl groups which generated [above-mentioned] is carried out further, and it forms a siloxane bond. The condensate generated such in this invention is also included by the hydrolysis product. The output acquired by the above-mentioned hydrolysis reaction is usually a mixture of various sorts, and the molecular weight can be suitably controlled by adjusting the quantity of an acid catalyst, the addition of water, etc. In this invention, when a hydrolysis product is used as a surface treating material, even if it uses at least one sort alone, at least one sort of hydrolysis products may be used combining a hydrolytic basis content silane compound by the siloxane and request which are expressed with at least one sort of formulas I.

[0020]The inorganic material used by inorganic material this invention Injection-molding

lamination, transfer molding, They are the inorganic solid particles for which it was suitable since it was used in various shaping or the coating processing of compression molding, coating, casting, etc., Specifically Silica, colloidal silica, diatomaceous earth, alumina, a zinc oxide, Oxides, such as titanium oxide, a calcium oxide, magnesium oxide, iron oxide, and a ferrite; Calcium hydroxide, Hydroxide, such as magnesium hydroxide and aluminium hydroxide; Calcium carbonate, Carbonate, such as magnesium carbonate, zinc carbonate, and barium carbonate; Calcium sulfate, Sulfuric acid and sulfite salt, such as barium sulfate, calcium sulfite, and gypsum fibers; A calcium silicate, Aluminum silicate, wollastonite, talc, clay, mica, Montmorillonite, kaolin, asbestos, bentonite, the activated clay, sand, Silicates, such as glass fiber, a glass bead, a glass flake, and a silica system balloon; Aluminum, Metal, such as copper; carbon, such as carbon black, graphite, and carbon fiber, and potassium titanate, a stainless steel fiber, zinc borate, various magnetic substance powder (the case where this is used is explained in detail in the bottom), lead zirconate titanate, etc. are mentioned. The inorganic filler used in this invention is not especially restricted, either, but is suitably chosen from the above-mentioned inorganic materials. And the inorganic filler is explained by this specification as what is included by the inorganic material. As an inorganic filler for a rubber composition, for example, carbon black, White carbon, clay, calcium carbonate, barium sulfate, magnesium carbonate, a flower of zinc, etc. are mentioned, and in order to be a resin composition for sealing agents, kaolin, talc, silica powder, glass powder, a calcium silicate, titanate acid calcium, etc. are mentioned.

[0021]As organic materials used by organic-materials this invention, For example, polyethylene, polypropylene, polyvinyl chloride, polystyrene, ABS plastics, an AS resin, methacrylic resin, polyvinyl alcohol, a polyvinylidene chloride, Polyethylene terephthalate, polybutylene terephthalate, polyamide, Polyacetal, polycarbonate, denaturation phenylene ether, poly SARUHON, Polyether sulphone, a polyphenylene sulfide, polyarylate, Polyamidoimide, polyether imide, polyether ketone, polyimide, Polyester, polytetrafluoroethylene, phenol resin, urea resin, Melamine resin, alkyd resin, unsaturated polyester resin, an epoxy resin, Diallyl phthalate resin, polyurethane, silicone resin, cellulose, Synthetic resins, such as a fluoro-resin, furan resin, a nitrile resin, and polyamide resin, Butadiene rubber, polyisoprene rubber, chloroprene rubber, styrene butadiene rubber, Natural fibers, such as synthetic rubbers, such as isobutylene-isoprene copolymerization rubber, acrylonitrile butadiene copolymerization rubber, and ethylene-propylene copolymerization rubber, and crude rubber, wool, hemp, silk, and cotton, wood, Vegetable processed goods, such as paper, etc. can be mentioned.

[0022]The surface treatment of the constituent inorganic material is carried out with the siloxane or this siloxane, and hydrolytic basis content silane compound which have the specific structure of this invention. Although procedure is not limited, it can be performed by the

conventional method of processing an inorganic material by a silane coupling agent. For example, the method (direct processing method) of processing an inorganic material directly with a siloxane or this siloxane, and a hydrolytic basis content silane compound, A siloxane or this siloxane, and a hydrolytic basis content silane compound are added at the time of kneading with organic materials and an inorganic material, and the method (the integral blending method) of performing simultaneously the surface treatment of an inorganic material and combination to organic materials etc. can be used. Although a direct processing method is performed by carrying out mixed stirring of the above-mentioned siloxane, an inorganic material, or the above-mentioned siloxane, a hydrolytic basis content silane compound and an inorganic material, It is desirable to use a siloxane or this siloxane, and a hydrolytic basis content silane compound for them beforehand, dissolving or distributing diluents, such as an organic solvent and a drainage system solvent. For example, it is preferred to use alcoholic solvent or an alcoholic aqueous solution as a diluent. A siloxane or this siloxane, and a hydrolytic basis content silane compound may be used after considering it as a hydrolysis product beforehand. Although the device in particular that performs the above-mentioned mixed stirring is not limited, a Henschel mixer, a V type mixer, a super mixer, etc. can be used. If mixers, such as a Henschel mixer to which a share is added greatly, are used, even if it will not use a diluent, mixing is possible enough. The method of carrying out addition mixing using grinders, such as a rotation ball mill, a vibration ball mill, and a jet mill, is also effective. When carrying out mixed stirring using a diluent, the method made [a hydrolytic basis content silane compound] to fully react to a siloxane or this siloxane is effective in the inorganic material surface by heat-treating removing a diluent after mixed stirring. As for the temperature in this case, 200 °C or less is preferred, and although any under ordinary pressure, decompression, or application of pressure may be sufficient, when removing a diluent simultaneously with heat treatment, it is preferred to carry out below by ordinary pressure. As for especially mixed stirring in those without a diluent, it is preferred to heat during mixed stirring and to advance the condensation reaction of the above-mentioned siloxane, an inorganic material, or this siloxane, a hydrolytic basis content silane compound and an inorganic material. It is also possible to advance a condensation reaction with stirring heat. It is desirable especially desirable that it is 0.01 to 30.0 % of the weight to an inorganic material, and the amount of the siloxane used with the constituent of this invention or this siloxane, and the hydrolytic basis content silane compound used is 0.1 to 10.0 % of the weight. If there is less amount used than 0.01 % of the weight, the improved effect of the mechanical strength of a composite material and a processing moldability will not fully be acquired, but when more than 30.0 % of the weight, mechanical properties, such as flexural strength, may fall. As for the weight ratio of a siloxane / hydrolytic basis content silane compound, when using the siloxane of this invention together with a hydrolytic basis content silane compound, it is preferred that it is 100 / 1 -

1/100. When the weight ratio of a siloxane / hydrolytic basis content silane compound is smaller than 1/100, there is a tendency for a treatment effect to almost be lost to carbonate, sulfate, sulfite salt, and carbon black of alkaline-earth metals (when there are many hydrolytic basis content silane compounds).

[0023]The inorganic material by which the surface treatment was carried out to the siloxane of this invention or this siloxane with the hydrolytic basis content silane compound can be used as a composite material by mixing, stirring and kneading with various organic materials. Organic materials can use one or more sorts of things out of the above mentioned thing, choosing them suitably. The device in particular mixed, stirred and kneaded is not limited, and a batch type kneader, a Banbury mixer, a Henschel mixer, a roll, a 1 axis extrusion machine, a twin screw extruder, etc. are mentioned. Although it is effective to process an inorganic material previously with the above-mentioned siloxane or this siloxane, and a hydrolytic basis content silane compound, The method of adding the above-mentioned siloxane or this siloxane, and the hydrolytic basis content silane compound to resin beforehand and the method of kneading the above-mentioned siloxane, an inorganic material and organic materials or the above-mentioned siloxane, a hydrolytic basis content silane compound and an inorganic material, and organic materials at the time of kneading are also effective. It is also possible to add various additive agents and auxiliary materials at the time of kneading. As various additive agents or auxiliary materials, stabilizer, an antioxidant, an ultraviolet ray absorbent, light stabilizer, A spray for preventing static electricity, lubricant, a processability improving agent, a dispersing agent, a neutralizer, a foaming agent, a cellular inhibitor, Colorant, a bridge construction auxiliary agent, etc. are mentioned and more concretely For example, dimethylpolysiloxane, They are a graft of poly dimethylsiloxane and polyoxyalkylene or a mutual block copolymer, reactant organic functional group denaturation dimethylpolysiloxane, etc. (for example, amino modifying, epoxy denaturation, acrylic modification, mercapto denaturation, etc.). Although kneading is performed in a -50-400 °C temperature range, when organic materials are thermosetting resin, the temperature range which hardening of resin does not follow is chosen. When the solvent is added into the mixture, the method of performing solvent recovery simultaneously with kneading is effective. A mixing step is not required and is effective. [of the method of processing the inorganic material surface using spray dry etc., or making form a granulated body and using as material with the sufficient processability at the time of shaping]

[0024]Since the siloxane of the specific structure in this invention has a functional group reacted to the functional group reacted to organic materials, and an inorganic material, It not only demonstrates the same performance as a silane coupling agent, but since it has a still more nearly special molecular skeleton, it can demonstrate the performance effectively to the material which could not demonstrate the performance of the silane coupling agent easily. The

constituent which blended the siloxane of the specific structure of this invention is further processed with the publicly known processing method currently performed in each field, and can be used. Since the mechanical property, a water resisting property, weatherability, an adhesive property, a processing moldability, etc. are improved as for the molding material produced by processing it, It is useful in the field which manufactures and uses the field of various composite materials, such as FRP and FRTP which combined especially an inorganic material and organic materials, artificial marble, a synthetic resin magnet, resin concrete, a shell mold, an elastomer, and magnetic tape, especially a synthetic resin magnet, a rubber composition, a sealing agent, etc.

[0025]Magnetic substance powder, a synthetic resin magnet material, and the magnetic substance powder used in synthetic resin magnet this invention are hard ferrite system magnet powder, such as conventional magnetic substance powder, for example, a strontium ferrite, and a barium ferrite, Alnico alloy system magnet powder, and rare earth, iron and boron system magnet powder. When manufacturing the magnetic substance powder in which surface treatment of this invention was carried out, can choose suitably the compounding ratio of the siloxane and magnetic substance powder which are expressed with the above-mentioned formula I, but. Generally, 0.05 to 10.00 % of the weight of siloxanes and the range of 99.5 to 90.00 % of the weight of magnetic substance powder are preferred, and especially especially 0.3 to 5.00 % of the weight of siloxanes and the range of 99.7 to 95.0 % of the weight of magnetic substance powder are preferred. When there are few siloxanes, at the time of kneading with a synthetic resin, and shaping, the dispersibility of magnetic substance powder falls remarkably, and an improvement of molding workability is not obtained, and the improved effect of magnetic properties is thin. On the other hand, mechanical properties, such as flexural strength, fall and it is not desirable except that product appearance falls, when there are too many siloxanes.

[0026]Surface treatment of magnetic substance powder may be performed by the publicly known method usually performed in this field. For example, although carried out by carrying out mixed stirring of the above-mentioned siloxane and the magnetic substance powder, after dissolving or distributing a siloxane to diluents, such as an organic solvent and a drainage system solvent, beforehand, it is preferred to perform mixed stirring. As a diluent in this case, alcoholic solvent or an alcoholic aqueous solution is used. On the occasion of surface treatment processing of magnetic substance powder, an additive agent, for example, a silane coupling agent, its oligomer, The graft or mutual block copolymer of dimethylpolysiloxane, poly dimethylsiloxane, and polyoxyalkylene, Reactant organic functional group denaturation dimethylpolysiloxane (for example, amino modifying, epoxy denaturation, acrylic modification, mercapto denaturation, etc.) etc. may use together lubricant, fatty acid, its salt, etc. Although the device in particular that performs the above-mentioned mixed stirring is not limited, a

Henschel mixer, a V type mixer, a super mixer, etc. can be used. If mixers, such as a Henschel mixer to which a share is added greatly, are used, even if it will not use a diluent, mixing is possible enough. Mixed stirring can also be carried out using grinders, such as a rotation ball mill, a vibration ball mill, and a jet mill.

[0027]When carrying out mixed stirring using a diluent, the method to which a siloxane is made to fully react is effective in the magnetic-substance-powder surface by heat-treating removing a diluent after mixed stirring. As for the temperature in the case of carrying out mixed stirring with a diluent, 200 °C or less is preferred without a diluent, and although any under ordinary pressure, decompression, or application of pressure may be sufficient, when removing a diluent simultaneously with heat treatment, it is preferred to carry out below by ordinary pressure. As for mixed stirring in those without a diluent, it is preferred to heat in a mixed agitator or a grinder and to advance the condensation reaction of a siloxane and magnetic substance powder. It is also possible to advance a condensation reaction with stirring heat, without performing positive heating. The duration time of mixed stirring is chosen suitably.

[0028]The synthetic resin magnet material which consists of the above-mentioned siloxane, magnetic substance powder, and a synthetic resin also constitutes this invention. Using a batch type kneader, a Banbury mixer, a Henschel mixer, a roll, 1 axis extrusion machine, a biaxial extrusion machine, etc., this synthetic resin magnet material can stir [mixing] and knead the mixture of the magnetic substance powder which was indicated above and which carried out surface treatment, and a synthetic resin, and can obtain it in a -50-300 °C temperature range. Thus, although it is preferred to process magnetic substance powder by a siloxane beforehand, The siloxane is added to the synthetic resin, the method of mixing this with magnetic substance powder and the method of kneading unsettled magnetic substance powder, a siloxane, and a synthetic resin can also be adopted, and the method will not be restricted if it is a method with which the three above-mentioned ingredients are mixed. Also to a synthetic resin magnet material, an additive agent, for example, a silane coupling agent, Alkoxysilane and those hydrolysis products, dimethylpolysiloxane, Lubricant, such as a graft of poly dimethylsiloxane and polyoxyalkylene or a mutual block copolymer, and reactant organic functional group denaturation dimethylpolysiloxane (for example, amino modifying, epoxy denaturation, acrylic modification, mercapto denaturation, etc.), fatty acid, its salt, etc. may be added.

[0029]Although the synthetic resin in particular used in this invention is not restricted, it can use any synthetic resin currently conventionally used for the synthetic resin magnet, and may be thermoplastics, or may be thermosetting resin. Specifically Polyamide, polyester, polyethylene, polypropylene, Polyvinyl chloride, polyvinyl acetate, polybutadiene, a polyphenylene sulfide (PPS), Polyphenylene oxide (PPO), a fluoro-resin, an epoxy resin, urea resin, It is independent, or melamine resin, polyimide, polyurethane, an acrylic resin, ABS

plastics, polystyrene, phenol resin, furan resin, polycarbonate, polyacetal, silicon resin, or those denaturation things can be combined and used. When using thermosetting resin, kneading temperature chooses the temperature range where hardening of this resin does not advance. In the case of manufacture of a synthetic resin magnet material, when the solvent is added, it is effective to perform solvent recovery simultaneously with kneading. The method of processing magnetic substance powder using spray dry etc., or making form grain and using as material with good processability at the time of shaping, without performing a mixing step, etc. are effective. Although the gestalt in particular of the synthetic resin magnet material of this invention is not restricted, the additive agent blended each material and if needed as mentioned above is cut after heat kneading, and it is preferred from points, such as usability, that it is a pellet form-like. It may be the grain obtained from points, such as molding workability, by spray dry etc. as mentioned above.

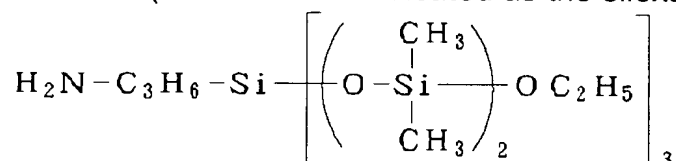
[0030]The synthetic resin magnet material of this invention is used mainly by an electronics field. When using the synthetic resin magnet material of this invention for these uses, this material may be processed by the publicly known processing method currently performed in each field. For example, shaping processing can be performed to the above-mentioned material, and a synthetic resin magnet can be manufactured. The method of of compression molding performed as a method of manufacturing the synthetic resin magnet which has high magnetic properties especially while applying a magnetic field, extrusion molding, or injection molding etc. is mentioned. The synthetic resin magnet which was especially excellent in surface smoothness and magnetic properties with compression forming is obtained. A Plastic solid magnetizes further and usually improves the performance as a permanent magnet. Magnetization is performed by the capacitor magnetization machine etc. which generate the conventional method, for example, the electromagnet made to generate a static magnetic field, and a pulse magnetic field. Ten or more kOe of magnetic field intensity for fully magnetizing are 30 or more kOe still more preferably preferably. The synthetic resin magnet obtained from the above-mentioned synthetic resin magnet material of this invention also constitutes this invention. The synthetic resin magnet of this invention may be used as a magnet roll, a motor, a switch, etc. in various fields including an electronics field.

[0031]

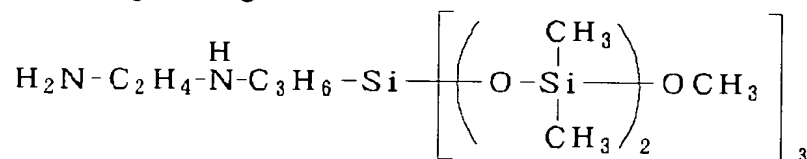
[Example]Next, although this invention is concretely explained based on an example, this invention is not limited to these examples.

[0032]To the 500-ml 4-inlet separable flask provided with example of synthetic example composition 1 agitator of a siloxane, the thermometer, the reflux condenser, and the nitrogen introducing pipe. 99.7 g of gamma-aminopropyl triethoxysilane, 200.3 g of 1,1,3,3,5,5,7,7-octamethylcyclotetrasiloxane, and 0.48 g of 25% sodium methoxide were added, and it stirred at 150 °C for 5 hours. Filtration was performed and output was acquired, after having added

0.24g of glacial acetic acid, stirring further after cooling at 50 °C or less for 1 hour and removing an unreacted material under heating under reduced pressure subsequently. When the property value of the acquired output was measured, it was the 1.402 amino equivalents refractive index 650 (theoretical value 665). $\delta(\text{ppm})0.3$ by which the following spectra were observed in analysis of $^1\text{H-NMR}$ of this output (36H, Si-CH₃), 0.7 (2H, Si-CH₂), 1.9 (2H, Si-C-CH₂), 2.0H (9H, O-C-CH₃), 3.0 (2H, N-CH₂), 4.0 (6H, Si-OCH₂). When analysis by GPC of the above-mentioned output was conducted, styrene conversion showed the peak of the number average molecular weight 600. From the above thing, it was checked that the acquired output is a siloxane (it is hereafter indicated as the siloxane A) which has the following average structure.

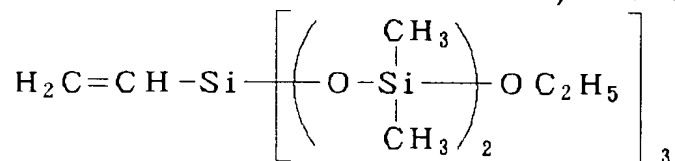


[0033]In the example 1 of synthetic example 2 composition, replace with used gamma-aminopropyl triethoxysilane and 99.9 g of N-(beta-aminoethyl)-gamma-aminopropyl trimethoxysilane, It reacted like the synthetic example 1 except having used 200.1g of 1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, and 7-octamethylcyclotetrasiloxane. When the property value of the acquired output was measured, it was the 1.425 amino equivalents refractive index 321 (theoretical value 334). $\delta(\text{ppm})0.3$ (36H, Si-CH₃), 0.7 (2H, Si-CH₂), 3.0 (6H, N-CH₂), 3.8 by which the following spectra were observed in analysis of $^1\text{H-NMR}$ of this output (9H, Si-OCH₃). When analysis by GPC of the above-mentioned output was conducted, styrene conversion showed the peak of the number average molecular weight 600. From the above thing, it was checked that the acquired output is a siloxane (it is hereafter indicated as the siloxane B) which has the following average structure.

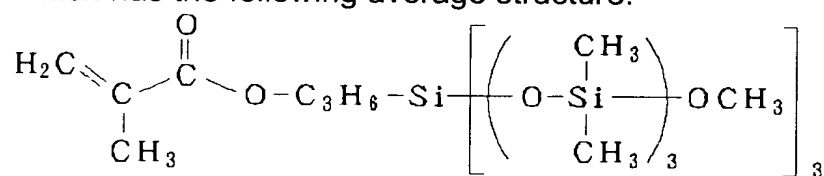


[0034]To the 1-l. 4-inlet separable flask provided with synthetic example 3 agitator, the thermometer, the reflux condenser, and the nitrogen introducing pipe. 89.9 g of vinyltriethoxysilane, 210.1 g of 1,1,3,3,5,5,7,7-octamethylcyclotetrasiloxane, and the potassium hydrate 0.5g were added, and flowing-back stirring was carried out at 100 °C for 6 hours. It filtered, after having added 1.5g of acetic acid, having stirred it, after cooling reaction mixture, and removing an unreacted material under decompression. Thus, the output of the refractive index 1.402 was acquired. $\delta(\text{ppm})0.3$ by which the following spectra were observed in

analysis of $^1\text{H-NMR}$ of this output (36H, Si-CH_3), 2.0 (9H, Si-O-C-CH_3), 4.0 (6H, Si-OCH_2), 6.1 (3H, $\text{CH}_2=\text{CH-Si}$). When analysis by GPC of the above-mentioned output was conducted, styrene conversion showed the peak of the number average molecular weight 650. When this compound was analyzed by IR, it had the absorption which belongs to 1600-cm^{-1} at a vinyl group. From the above thing, it was checked that the acquired output is a siloxane (it is hereafter indicated as the siloxane C) which has the following average structure.

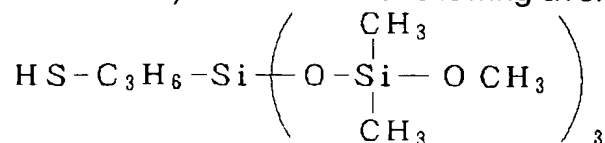


[0035]To the 1-l. 4-inlet separable flask provided with synthetic example 4 agitator, the thermometer, the reflux condenser, and the nitrogen introducing pipe. 81.4 g of gamma-methacryloxypropyl trimethoxy silane, 218.6 g of 1,1,3,3,5,5,7,7-octamethylcyclotetrasiloxane, and the sulfuric acid 9g were added, and it stirred at ordinary temperature for 7 hours. It filtered, after having added 45g of sodium bicarbonate, stirring it and removing an unreacted material under decompression. When the property value of the acquired output was measured, it was the refractive index 1.411. $\delta(\text{ppm})0.3$ by which the following spectra were observed in analysis of $^1\text{H-NMR}$ of this output (54H, Si-CH_3), 0.7 (2H, Si-CH_2), 2.0 (5H, Si-C-CH_2 , $\text{C}=\text{CCH}_3\text{-CO}$), 3.5 (9H, Si-OCH_3), 4.2 (2H, $\text{COO-CH}_2\text{-C}$), 5.6 (1H, $\text{CH}_2=\text{C}$), 6.2 (1H, $\text{CH}_2=\text{C}$). When analysis by GPC of the above-mentioned output was conducted, styrene conversion showed the peak of the number average molecular weight 900. From the above thing, it was checked that the acquired output is a siloxane (it is hereafter indicated as the siloxane D) which has the following average structure.

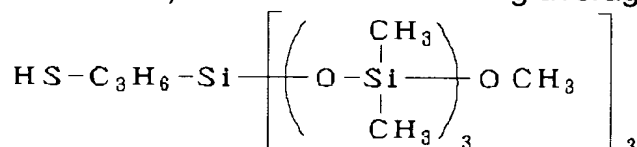


[0036]In the example 4 of synthetic example 5 composition, replace with the used gamma-methacryloxypropyl trimethoxy silane, and 140.7 g of gamma-mercapto propyltrimethoxysilane, It reacted like the synthetic example 4 except having used 159.3 g of 1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, and 7-octamethylcyclotetrasiloxane. This acquired the output of the refractive index 1.431. $\delta(\text{ppm})0.3$ by which the following spectra were observed in analysis of $^1\text{H-NMR}$ of this output (18H, Si-CH_3), 0.7 (2H, Si-CH_2), 1.7 (1H, HS-), 1.9 (2H, Si-C-CH_2), 2.5 (2H, Si-C-CH_2), 3.8 (9H, Si-OCH_3). When analysis by GPC of the above-mentioned output was conducted, styrene

conversion showed the peak of the number average molecular weight 400. From the above thing, it was checked that the acquired output is a siloxane (it is hereafter indicated as the siloxane E) which has the following average structure.



[0037] In the example 4 of synthetic example 6 composition, replace with the used gamma-methacryloxypropyl trimethoxy silane, and 68.2 g of gamma-mercapto propyltrimethoxysilane, It reacted like the synthetic example 4 except having used 231.8 g of 1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, and 7-octamethylcyclotetrasiloxane. This acquired the output of the refractive index 1.413. :delta (ppm)0.3 by which the following spectra were observed in analysis of ¹H-NMR of this output (54H, Si-CH₃), 0.7 (2H, Si-CH₂), 1.7 (1H, HS-), 1.9 (2H, Si-C-CH₂), 2.5 (2H, Si-C-CH₂), 3.8 (9H, Si-OCH₃). When analysis by GPC of the above-mentioned output was conducted, styrene conversion showed the peak of the number average molecular weight 850. From the above thing, it was checked that the acquired output is a siloxane (it is hereafter indicated as the siloxane F) which has the following average structure.

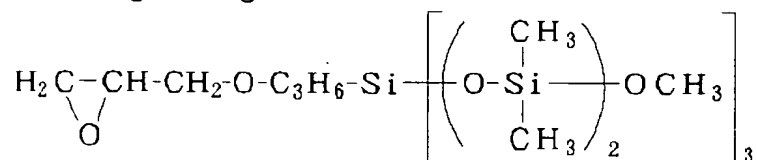


[0038] To the 1-l. 4-inlet separable flask provided with synthetic example 7 agitator, the thermometer, the reflux condenser, and the nitrogen introducing pipe. 107.8 g of trimethoxysilane, 392.2 g of 1,1,3,3,5,5,7,7-octamethylcyclotetrasiloxane, and the sulfuric acid 15g were added, and it stirred at ordinary temperature for 7 hours. It filtered and the intermediate was obtained, after having added 75g of sodium bicarbonate, stirring it and removing an unreacted material under decompression. Next, 241.6 g of the above-mentioned intermediates and 90 g of toluene were added to the 500-ml 4-inlet separable flask provided with the agitator, the thermometer, the reflux condenser, and the dropping funnel, and it heated at 80 **. It checks having become 80 **, 1 ppm of chloroplatinic acid is added, and the allyl glycidyl ether 58.4g is dropped over 0.5 hour.

Then, it stirred at 80 ** for 4 hours.

Next, the reaction solution was cooled, and 1.5g of sodium bicarbonate was added, it neutralized, and the unreacted material and the solvent were removed and filtered under decompression. Thus, when the property value of the acquired output was measured, it was the refractive index 1.416. :delta(ppm)0.3 by which the following spectra were observed in

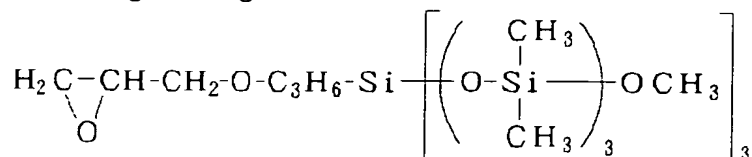
analysis of $^1\text{H-NMR}$ of this output (36H, Si-CH₃), 0.7 (2H, Si-CH₂), 1.7 (2H, Si-C-CH₂), 2.7 (2H, O-CH₂-C-C-Si), 3.2 (2H, C-O-CH₂), 3.6 (3H, O-CH₂-CH), 3.8 (9H, O-CH₃). When analysis by GPC of the above-mentioned output was conducted, styrene conversion showed the peak of the number average molecular weight 700. From the above thing, it was checked that the acquired output is a siloxane (it is hereafter indicated as the siloxane G) which has the following average structure.



[0039]77.4 g of trimethoxysilane, 422.6 g of 1,1,3,3,5,5,7,7-octamethylcyclotetrasiloxane, and the sulfuric acid 15g were added to the 1-l. 4-inlet separable flask provided with synthetic example 8 agitator, the thermometer, the reflux condenser, and the nitrogen introducing pipe, and it stirred at ordinary temperature for 7 hours. It filtered and the intermediate was obtained, after having added 75g of sodium bicarbonate, stirring it and removing an unreacted material under decompression. Next, 255.6 g of the above-mentioned intermediates and 90 g of toluene were added to the 500-ml 4-inlet separable flask provided with the agitator, the thermometer, the reflux condenser, and the dropping funnel, and it heated at 80 **. It checks having become 80 **, 1 ppm of chloroplatinic acid is added, and the allyl glycidyl ether 44.4g is dropped over 0.5 hour.

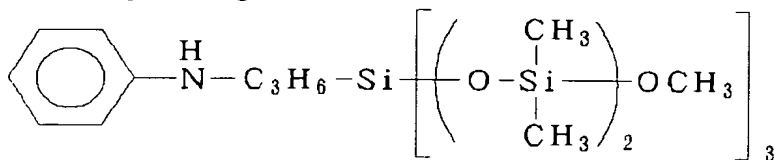
Then, it stirred at 80 ** for 4 hours.

Next, the reaction solution was cooled, and 1.5g of sodium bicarbonate was added, it neutralized, and the unreacted material and the solvent were removed and filtered under decompression. Thus, when the property value of the acquired output was measured, it was the refractive index 1.411. $\Delta(\text{ppm})0.3$ by which the following spectra were observed in analysis of $^1\text{H-NMR}$ of this output (54H, Si-CH₃), 0.7 (2H, Si-CH₂), 1.7 (2H, Si-C-CH₂), 2.7 (2H, O-CH₂-C-C-Si), 3.2 (2H, C-O-CH₂-), 3.6 (3H, O-CH₂-CH-), 3.8 (9H, -O-CH₃). When analysis by GPC of the above-mentioned output was conducted, styrene conversion showed the peak of the number average molecular weight 900. From the above thing, it was checked that the acquired output is a siloxane (it is hereafter indicated as the siloxane H) which has the following average structure.



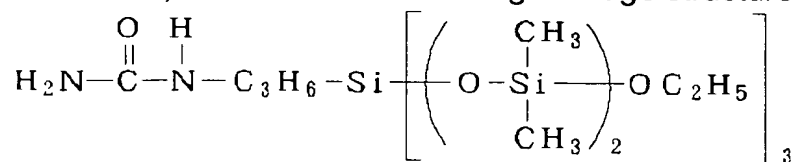
[0040] In the flask used in the example 1 of synthetic example 9 composition, 99.9 g of N-(beta-aminoethyl)-gamma-aminopropyl trimethoxysilane, 200.1 g of 1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, and 7-octamethylcyclotetrasiloxane and 0.48 g of tetramethylammonium hydroxide were added, and it stirred at 120 °C for 5 hours. Next, after heating at 150 °C and decomposing a catalyst, it heated under decompression and unreacted components were removed. When the property value of the acquired output was measured, they were viscosity 25 mm²/s (cSt) in 25 °C, and the 1.425 amino equivalents refractive index 321 (theoretical value 334). When analysis by GPC of the above-mentioned output was conducted, styrene conversion showed the peak of the number average molecular weight 600.

[0041] 109.4 g of gamma-phenylamino propyltrimethoxysilane, 190.6 g of 1,1,3,3,5,5,7,7-octamethylcyclotetrasiloxane, and 0.48 g of sodium methoxide were added to the flask used in the example 1 of synthetic example 10 composition, and it stirred at 150 °C for 5 hours. Filtration was performed and output was acquired, after having added 0.24g of glacial acetic acid, stirring further after cooling at 50 °C or less for 1 hour and removing an unreacted material under heating under reduced pressure subsequently. When the property value of the acquired output was measured, they were viscosity 26 mm²/s (cSt) in 25 °C, and the 1.485 amino equivalents refractive index 689 (theoretical value 699). δ (ppm) 0.3 by which the following spectra were observed in analysis of ¹H-NMR of this output (36H, Si-CH₃), 0.7 (2H, Si-CH₂), 1.9 (2H, Si-C-CH₂), 3.0 (2H, N-CH₂), 3.8 (9H, Si-OCH₃), 7.2-7.5 (5H, Ar-H). When analysis by GPC of the above-mentioned output was conducted, styrene conversion showed the peak of the number average molecular weight 650. From the above thing, it was checked that the acquired output is a polysiloxane (it is hereafter indicated as the siloxane I) which has the following average structure.



[0042] In the flask used in the example 1 of synthetic example 11 composition, the 50-% of the weight methanol solution 163.0g of gamma-ureido propyl triethoxysilane, 137.0 g of 1,1,3,3,5,5,7,7-octamethylcyclotetrasiloxane and 0.48 g of sodium methoxide were added, and it stirred at 150 °C for 5 hours. Filtration was performed and output was acquired, after having added 0.24g of glacial acetic acid, stirring further after cooling at 50 °C or less for 1 hour and removing an unreacted material under heating under reduced pressure subsequently. When the property value of the acquired output was measured, they were viscosity 30 mm²/s (cSt) in 25 °C, and the 1.405 amino equivalents refractive index 692 (theoretical value 708). δ (ppm)

0.3 by which the following spectra were observed in analysis of $^1\text{H-NMR}$ of this output (36H, Si-CH₃), 0.7 (2H, Si-CH₂), 1.9 (2H, Si-C-CH₂), 2.0 (9H, O-C-CH₃), 3.4 (2H, N-CH₂), 4.0 (6H, Si-OCH₂). When analysis by GPC of the above-mentioned output was conducted, styrene conversion showed the peak of the number average molecular weight 680. From the above thing, it was checked that the acquired output is a polysiloxane (it is hereafter indicated as the siloxane J) which has the following average structure.



[0043]Polyphenylene sulfide resin (it is hereafter indicated as PPS resin) was used as example 1 synthetic resin, calcium carbonate was used as an inorganic material, the composite material was created, and the physical properties were evaluated. Specifically PPS resin (product made from Kureha chemicals) 100 weight section, the mean fiber diameter of 0.8 micrometer, After mixing for 2 minutes with a blender in addition with the compounding ratio which shows calcium carbonate (made by Maruo Calcium) and the various finishing agents of 25 micrometers of mean fiber length, and the average aspect ratio 31 in the lower table 1, with the extrusion machine, melt kneading of this was carried out, it was extruded by 310 ** of cylinder temperatures, and the pellet of PPS resin was created. Subsequently, the melt viscosity in temperature [of 310 **] and 1200/of shear rate sec was measured by the capillary tube of 1 mmphix10mmL using this pellet. The test piece for tensile test which was based on 320 ** of cylinder temperatures with the injection molding machine, and was based on ASTM D638 with the die temperature of 150 **, and the test piece for bend test based on ASTM D790 were fabricated, and tensile strength and flexural strength were measured. The evaluation result was indicated to Table 1.

[0044]

[Table 1]

----- example Comparative example 1-1 1-2 1-1 1-2 Rate of a 1-3 -----
----- compounding ratio (weight section)

PPS resin 100 100 100 100. 100 Calcium carbonate 50 50 50. 50 50 siloxane A 1 - - - . -

siloxane G - 1 - - - A-1100^{*1} - - 1 - - A-187^{*2} - - - 1 - property value melt viscosity (Pa-s) -- 67.5
66.5 77 78.5 79 tensile strength (MPa). 135 128 110 106 105 flexural strength (MPa) -- 134
126 120 117 115. ----- ^{*1}gamma-aminopropyl triethoxysilane ^{*2}gamma-

glycidoxypopyltrimetoxysilane[0045]Unsaturated polyester resin was used as example 2 synthetic resin, glass powder was used as an inorganic material, the composite material was created, and the physical properties were evaluated. Specifically Unsaturated-polyester-resin

(NIPPON SHOKUBAI make, trade name G-227) 100 weight section, By the finishing agent of the combination shown in Table 2, processed beforehand or un-processing Glass powder (fellow make, trade name fritto 3134) 40 weight section, Methyl-ethyl-ketone-peroxide (it is hereafter indicated as MEKPO) 1.5 weight section and cobalt-naphthenate 1.5 weight section are added, After mixing enough and carrying out vacuum defoaming, pour into a mold, made it harden at a room temperature for 12 hours, and it was made to harden at 60 more ** for 6 hours, and removed from the mold, and the specimen with a size of 5 cm x 5 cm was created. Based on JIS A5705, evaluation of the light transmittance of the specimen before and behind 12 cycle deed and boiling was performed for boiling based on JIS A5705 using this specimen. Measurement of bending strength was performed based on ASTM D638. The evaluation result was indicated to Table 2.

[0046]

[Table 2]

		example		Comparative example		2-1		2-2		2-1		2-2		Rate of a		2-3	
		compounding ratio (weight section)															
Unsaturated polyester resin	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
glass powder	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40	40
MEKPO	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
Cobalt naphthenate	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
siloxane C	1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
Siloxane D	1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
A-171 ^{*1}	-	1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
A-174 ^{*2}	-	-	1	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
property value																	
Light transmittance (before boiling, %)	74	79	58	60	54	69	75	45	51	10	-	-	-	-	-	-	-
light transmittance (after boiling, %)	69	75	45	51	10	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
light transmittance survival rate (%)	93.2	94.9	77.6	85.0	18.5	1300	1500	1100	1200	900	-	-	-	-	-	-	-

-----^{*1} vinyltrimetoxysilane ^{*2} gamma-methacryloxpropyl trimethoxy silane[0047]6-nylon was used as an example 3(A) synthetic resin magnet, strontium ferrite powder was used as an inorganic material, the composite material was created, and the physical properties were evaluated. . Specifically processed beforehand by the finishing agent of the combination shown in Table 3 at 6-nylon (made by Ube Industries) 23 weight section. Or strontium ferrite powder (mean particle diameter of 1.20 micrometers) 200 unsettled weight section was added, stirring mixing was carried out enough, it kneaded at 250 ** after that using the 2 axis extruding kneading machine, and the synthetic resin magnet material of the pellet type was obtained. After carrying out heat melting of this obtained synthetic resin magnet molding material and impressing the magnetic field of 10kOe, cooling solidification was carried out, the specimen for characterization was created, and magnetism and a mechanical strength were measured. Measurement of MI (melt index) of a synthetic resin magnet material measured on 275 ** and the conditions of 15.4 kg of load. The magnetic properties of the acquired synthetic resin magnet Plastic solid were measured by external magnetic field 140kOe using BH tracer. Measurement of bending strength was performed based on ASTM D630. The evaluation result was indicated to Table 3.

[0048]

[Table 3]

----- example Comparative example 3-1 3-2 3-1 Rate of a 3-2 -----
 ----- compounding ratio (weight section)

Strontium ferrite 200 200. 200 200 6-nylon 23 23. 23 23 siloxane B 1.3 0.7. - - A-1122^{*1} - 0.6.
 1.3 - property value Residual magnetic flux density Br (kG) 2.90. 2.92 2.31 2.57 holding power
 bHc (Oe). 2.81 2.83 1.91 2.38. Maximum energy product (BH)_{max}^{*2} 2.01 2.02 1.47 1.68

bending strong (kg/cm²) 1450 1300 550 1100 MI(g/10min) 102 101 10 62. -----

----- -- a^{*1} N-(beta-aminoethyl)-gamma-aminopropyl trimethoxysilane^{*2} unit -- MGOe[0049](B)

Another example about the magnetic substance powder by which surface treatment was carried out, a synthetic resin magnet material, and a synthetic resin magnet is shown below. Stirring 89.5 % of the weight of strontium ferrite powder with a mean particle diameter of 1.1 micrometers with a Henschel mixer, the siloxane A (example 3-3), the siloxane I (example 3-4), or siloxane J (example 3-5) 0.5 % of the weight was added, and it mixed. Stoving of the mixture of each strontium ferrite powder and siloxane was carried out at 110 ** with the dryer for 1 hour, and the magnetic substance powder by which surface treatment was carried out was obtained. Then, again, with the Henschel mixer, 10.0 % of the weight of 6-nylon was added to this magnetic substance powder by which surface treatment was carried out, and it mixed further to it. Kneading extrusion and the synthetic resin magnet material of the pellet type were obtained for this mixture at 250 ** using the biaxial extrusion machine. After carrying out heat melting of this synthetic resin magnet material and impressing the magnetic field of 10kOe, cooling solidification was carried out, the specimen for characterization was created, and magnetic properties and a mechanical strength were measured. The measurement result was shown in the lower table 4 with the melt index (MI) of the synthetic resin magnet material. For comparison, 0.5 % of the weight of gamma-aminopropyl triethoxysilane uses instead of the siloxane A, I, or J in the above, And except having blended 88.6 % of the weight of strontium ferrite powder, and 10.9 % of the weight of 6-nylon, the specimen was fabricated like the above and various weighted solidity was measured (comparative example 3-3). The measurement result was shown in the lower table 4 with MI of the synthetic resin magnet material.

[0050]

[Table 4]

----- Example Comparative example 3-3 3-4 3-5 3-3. -----

----- Residual magnetic flux density Br^{*1} 2.86 2.77. 2.87 2.53 Holding power bHc^{*1} 2.75. 2.65
 2.76 2.37 maximum energy products (BH)_{max}^{*1} 1.98 1.89 1.95 1.65 bending-strength (kg/cm²)

^{*2}1320 1380 1440 1080 MI(g/10min) ^{*3}93. 97 108 51 ----- ^{*1} -- all are the property values which show magnetic properties, and were measured by external magnetic field 140kOe using BH tracer. In the residual magnetic flux density Br, kG and the holding power bHc are [Oe and maximum energy product (BH)_{max} of a unit] MGOe(s).

^{*2} flexural strength was measured according to ASTM D630. A unit is kg/cm².

^{*3}MI (melt index) was measured on 275 ** and the conditions of 15.4 kg of load. Units are g / 10 minutes.

[0051]The epoxy resin was used as example 4 synthetic resin, quartz powder was used as an inorganic material, the composite material was created, and the physical properties were evaluated. Specifically to epoxy resin (product made from BAKELITE, trade name ERL-2774) 180 weight section. It processed beforehand by the finishing agent of the combination shown in Table 5, or add quartz powder 100 unsettled weight section, anhydrous tetrahydrophthal acid 65 weight section, and benzyldimethylamine 1 weight section, mix enough, made it harden at 120 ** for 16 hours, it was made to harden at 180 more ** for 1 hour, and the specimen was created. The dielectric constant and dielectric dissipation factor before and behind 8-hour boiling were measured for the specimen created based on this ASTM D150. The evaluation result was indicated to Table 5.

[0052]

[Table 5]

----- example Comparative example 4-1 4-2 4-1 Rate of a 4-2 -----
----- compounding ratio (weight section)

Epoxy resin 180 180 180 180. Quartz powder 100 100 100 100. Anhydrous tetrahydrophthal acid 65 65 65. 65 Benzyldimethylamine 1 1 1. 1 Siloxane G 1 - - - The siloxane H. - 1 - - A-187^{*1} - -. 1 - property value Dielectric constant (first stage) 3.39. 3.40 3.40 3.39 Dielectric constant (after 8-hour boiling) 3.43 3.42 6.72 14.60 Dielectric dissipation factor (first stage) 0.014 0.015 0.016 0.017 Dielectric dissipation factor (after 8-hour boiling) 0.021 0.019 0.157 0.305. ----- ^{*1} gamma-glycidoxypyrroltrimetoxysilane

[0053]The composite material was created as example 5 synthetic resin using precipitated silica as styrene-butadiene-rubber copolymerization rubber (it is hereafter indicated as SBR) and butadiene rubber (it is hereafter indicated as BR), and an inorganic material, and the physical properties were evaluated. In addition (a weight section shows all the rates of a compounding ratio in front), the mix of SBR1712 was specifically carried out for 70 weight sections, various additive agents, and various finishing agents using the Banbury mixer and the roll by the combination which shows 100 weight sections and BR to 30 weight sections, and shows precipitated silica in Table 6, and the compound was obtained. Only the same time as the tC90 carried out the press cure of this compound at 160 **, and physical properties were evaluated.

The evaluation result was indicated to Table 6.

[0054]

[Table 6]

----- Example Comparative example 5-1 5-2 5-3 5-4 5-5 5-1 5-2 5-3 5-4.
 ----- Rate of a compounding ratio (weight section) SBR1712 100. 100
 100 100 100 100. 100 100 100 BR 30 30. 30 30 30 30 30 30. Precipitated silica 70 70 70 70
 70. 70 70 70 70 APO^{*1} 10. 10 10 10 10 10 10. 10 Zinc oxide 4 4 4 4 4. 4 4 Four Additive
 agent ^{*2} 1.2 1.2. 1.2 1.2 1.2 1.2 1.2. 1.2 1.2 DOTG ^{*3} 2.5. 2.5 2.5 2.5 2.5 2.5. 2.5 2.5 2.5 Sulfur
 1.6 1.6. 1.6 1.6 1.6 1.6 1.6 1.6 stearic acid 1 1 1 1 1 1 1 1 siloxane E 1.4 - 0.7 0.7 0.7 - - -
 - Siloxane F - 1.4 - - - - - A-1289^{*4} - - 0.7 - - 1.4 - - A-1589^{*5} - - 0.7 - - 1.4 - - A-162^{*6} - -
 - - 0.7. - - - A-189^{*7} - - - - - 1.4 - property value - Mooney viscosity ^{*8} 50 47 45 40 46 48 42
 62 62 and Mooney Scorching ^{*9} 18 20 21 23 23 23 25 13 26 and Shore A. 52 50 52 51 51 53 51
 52 50-300% Modulus ^{*10} 5.0 4.9 5.9 5.8 5.3 5.7 5.4 4.1 1.9. ----- ^{*1}
 aromatic process oil ^{*2} N-t-butylbenzotriazol 2-SARUFENAMIDO ^{*3} JIORUTOTORIKURORU
 dianidin ^{*4} bis(3-triethoxy silyl propyl)tetrasulfane ^{*5} bis(3-triethoxy silyl propyl)disulfane ^{*}. MU in
⁶ methyl triethoxysilane ^{*7} gamma-methacryloxypropyl-trimethoxy-silane ^{*8} 100 **. The Mooney
 scorching in - knee viscosity ML1+4 ^{*9} 135 **, t5 (min)

^{*10} unit MPa[0055]

[Effect of the Invention]The siloxane which has the specific structure in this invention, or its hydrolysis product can fully give the surface treatment effect also to inorganic materials, such as calcium carbonate which could not demonstrate the performance easily, not only in inorganic materials, such as silica and magnetic powder, but in the conventional silane coupling agent. The higher surface treatment effect over an inorganic material is acquired by using together the above-mentioned siloxane and a hydrolytic basis content silane compound, or using those hydrolysis products. Thus, the inorganic material of this invention by which the surface treatment was carried out with the above-mentioned siloxane, this siloxane, hydrolytic basis content silane compounds, or those hydrolysis products, Since surface treatment is fully made regardless of the kind of inorganic material, the filling factor and dispersibility to organic materials can be high, as a result, a processing moldability can improve, and mechanical properties, such as the toughness of a composite material, and water resisting property which are moreover obtained can be improved. The composite material which uses the siloxane which has the specific structure of this invention, this siloxane, hydrolytic basis content silane compounds, or those hydrolysis products Therefore, FRP, FRTP, artificial marble, a synthetic resin magnet, resin concrete, a shell mold, The demand to various composite materials including an elastomer, magnetic tape, etc. especially a synthetic resin magnet, a rubber

composition, a sealing agent, etc. functionalized [is complicated, is diversified and] and made severe can be satisfied, and it is dramatically useful, and suitable. Especially the magnetic substance powder by which the surface treatment (surface treatment) was carried out using the siloxane of this invention or its hydrolysis product is excellent in the dispersibility to the inside of a synthetic resin, And a raise in restoration into a synthetic resin is possible, the orientation rate to the inside of a synthetic resin can be raised further, and it is suitable as magnetic substance powder for the synthetic resin magnet excellent in the mechanical strength and molding workability which were demanded conventionally. The synthetic resin magnet material of this invention which consists of a specific siloxane or its hydrolysis product, magnetic substance powder, and a synthetic resin, Since magnetic properties, such as a maximum energy product, are excellent, and the melt index at the time of a fabricating operation is high and it not only excels also in mechanical properties, such as flexural strength, but it excellent in mobility, molding workability is dramatically high. For this reason, the synthetic resin magnet fabricated from the synthetic resin magnet material of this invention is obtained by high molding workability, moreover is excellent in magnetic properties and a mechanical strength, and can be broadly used for the electronics field currently asked for a miniaturization, a weight saving, and high precision-ization.

[Translation done.]

1/4

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-44583

(P2000-44583A)

(43) 公開日 平成12年2月15日 (2000.2.15)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テーマコード* (参考)
C 0 7 F 7/18		C 0 7 F 7/18	X Y
C 0 8 K 9/06		C 0 8 K 9/06	
C 0 8 L 21/00		C 0 8 L 21/00	
83/06		83/06	

審査請求 未請求 請求項の数13 F D (全 25 頁) 最終頁に続く

(21) 出願番号 特願平10-288818

(22) 出願日 平成10年9月25日 (1998.9.25)

(31) 優先権主張番号 特願平10-162978

(32) 優先日 平成10年5月27日 (1998.5.27)

(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000230331

日本ユニカー株式会社

東京都千代田区大手町2丁目6番1号

(72) 発明者 安藤 英治

神奈川県横浜市青葉区鴨志田町533 グリ

ーンヒル鴨志田京3-205

(72) 発明者 安田 弘文

神奈川県横浜市鶴見区生麦4-13-11 ベ

ルカーサ生麦801号

(72) 発明者 庄司 博昭

東京都品川区旗の台6-18-10

(74) 代理人 100106596

弁理士 河僧 健二

最終頁に続く

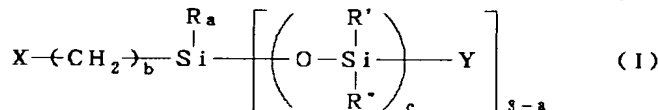
(54) 【発明の名称】 シロキサンを含有する組成物

(57) 【要約】

【課題】 無機材料の種類によらず表面改質効果を発揮し得るシロキサンの提供。

【解決手段】 式 I のシロキサンと場合により加水分解性基含有シラン化合物を用いて表面改質された無機材料

(炭酸カルシウム、シリカ、磁性粉等)。式 I のシロキサン、無機材料、有機材料 (P P S、ポリアミド、ゴム、エポキシ樹脂等) および場合により加水分解性基含有シラン化合物からなる組成物 (特に、合成樹脂磁石材料、ゴム組成物、封止材用組成物)。



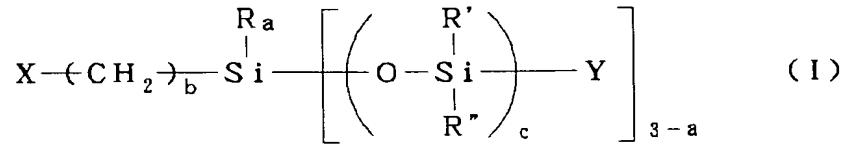
(a=0~2、b=0~20、c=1~100、R、R'、R''=アルキル基、アリール基等、X=ビニル基、アミノ基、ウレイド基、(メタ)アクリル基、エポ

キシ基、メルカプト基等、Y=アルコキシ基、オキシム基等)。

FP05-0128
(JP)
1

【特許請求の範囲】

【請求項1】 次式I:



〔式中、

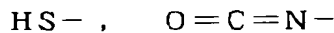
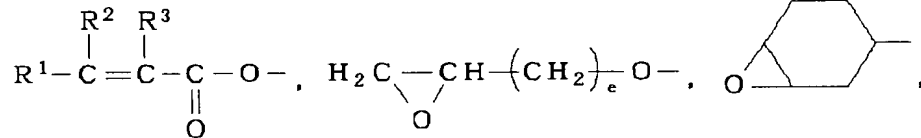
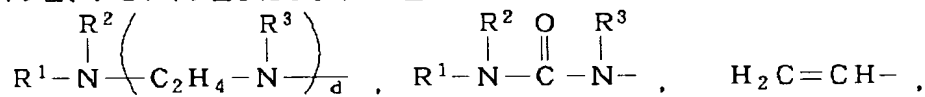
aは0ないし2の整数、bは0ないし20の整数、cは1ないし100の整数を表し、

Rは炭素原子数1ないし20のアルキル基、フルオロアルキル基、アリール基、アラルキル基、炭素原子数1ないし8のアルコキシ基、アセトキシ基またはオキシム基

を表すが、2個のRが存在する場合、それらは同じであっても、異なってもよく、

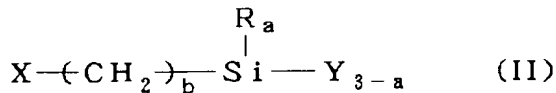
R' およびR'' は互いに独立して炭素原子数1ないし20のアルキル基、フルオロアルキル基、アリール基またはアラルキル基を表し、

Xは次式:

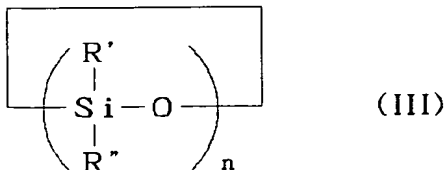


(式中、R¹、R² およびR³ は互いに独立して水素原子、炭素原子数1ないし10のアルキル基、アリール基またはアラルキル基を表し、そしてdおよびeは互いに独立して0ないし5の整数を表す) で表される基を表し、そしてYは炭素原子数1ないし8のアルコキシ基、アセトキシ基またはオキシム基を表す) で表されるシロキサンまたはその加水分解生成物の少なくとも1種を用いて表面処理された無機材料。

【請求項2】 シロキサンが次式II:



(式中、a、b、R、XおよびYは請求項1における定義と同じ意味を表す) で表される化合物と次式III:



(式中、R' およびR'' は請求項1における定義と同じ意味を表し、そしてnは3ないし8の整数を表す) で表される化合物との反応により得られるポリシロキサンである請求項1記載の表面処理された無機材料。

【請求項3】 シロキサンが上記式I中、RまたはYの少なくとも一方がアルコキシ基を表すものである請求項1または2記載の表面処理された無機材料。

【請求項4】 請求項1ないし3のいずれか1項に記載のシロキサンと加水分解性基含有シラン化合物またはそれらの加水分解生成物を用いて表面処理された無機材料。

【請求項5】 請求項1ないし3のいずれか1項に記載のシロキサンまたはその加水分解生成物の少なくとも1種を用いて表面処理された磁性体粉末。

【請求項6】 請求項1ないし3のいずれか1項に記載のシロキサンと加水分解性基含有シラン化合物またはそれらの加水分解生成物を用いて表面処理された磁性体粉末。

【請求項7】 請求項1ないし3のいずれか1項に記載のシロキサンまたはその加水分解生成物の少なくとも1種、無機材料および有機材料を含有する組成物。

【請求項8】 請求項1ないし3のいずれか1項に記載のシロキサンおよび加水分解性基含有シラン化合物またはそれらの加水分解生成物、無機材料および有機材料を含有する組成物。

【請求項9】 請求項1ないし3のいずれか1項に記載のシロキサンまたはその加水分解生成物の少なくとも1種、磁性体粉末および合成樹脂を含有する合成樹脂磁石材料。

【請求項10】 請求項1ないし3のいずれか1項に記載のシロキサンおよび加水分解性基含有シラン化合物またはそれらの加水分解生成物、磁性体粉末および合成樹脂を含有する合成樹脂磁石材料。

50 【請求項11】 請求項9または10記載の合成樹脂磁

石材料を成形して得られる合成樹脂磁石。

【請求項12】 請求項1ないし3のいずれか1項に記載のシロキサンまたはその加水分解生成物の少なくとも1種を無機充填材に対して0.01～30重量%含有するゴム組成物。

【請求項13】 請求項1ないし3のいずれか1項に記載のシロキサンまたはその加水分解生成物の少なくとも1種を無機充填材に対して0.01～30重量%含有する封止材用樹脂組成物。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明はシロキサンを含有する組成物に関し、より詳しくは特定構造を持つシロキサン単独または該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物とを併用して表面処理された無機材料、特に磁性体粉末、および上記シロキサン単独または該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物との組合せと無機材料と有機材料からなる組成物、特に合成樹脂磁石材料（および該材料から成形される合成樹脂磁石）、ゴム組成物または封止材用樹脂組成物に関するものである。

【0002】

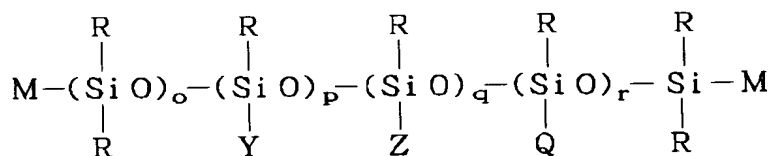
【従来の技術】近年、工学および工業の著しい発展に伴い、各種材料に対する要求も複雑化、多様化、機能化および過酷化してきている。このような要求には単一の材料では対応しきれない場合が多く、諸要求特性に合わせて材料特性が発現されるように複数の材料を適切に構成した各種複合材料の開発・使用が行われてきた。代表的な複合材料としてガラス繊維と不飽和ポリエステルからなるガラス繊維強化プラスチック（FRP）をはじめ、熱可塑性強化プラスチック（FRTP）、人工大理石、合成樹脂磁石、レジンコンクリート、封止材、シェルモールド、ゴムおよびエラストマー、磁気テープ等が挙げられる。

【0003】このような複合材料では有機材料と無機材料の界面での状態の良否が複合材料の諸特性に大きく影響を与えることが知られている。一般的に表面改質剤を使用して無機材料の表面を改質し、有機材料と無機材料の濡れ性および接着性の改善を行っている。この表面改質剤としてシラン系およびチタネート系のカップリング剤が一般的に使用されている。これらのシランカップリング剤は同一分子中に2種以上の異なる反応基を有する有機シラン化合物であり、一方の反応基が無機材料表面と反応し、他方の反応基が有機材料と反応することにより、無機材料を改質するだけでなく、無機材料と有機材料とを結合させる作用を有する。そのため、シランカップリング剤は繊維強化プラスチックにおけるガラス繊維

表面処理剤として使用されるのをはじめ、FRTP、人工大理石、合成樹脂磁石、レジンコンクリート、封止材、シェルモールド、ゴムおよびエラストマー、磁気テープ等の無機充填材または無機基材等の無機材料と有機材料とを組み合わせた複合材料において界面改質剤として使用される。さらにシランカップリング剤を複合材料に使用することにより、複合材料の機械的特性、電気的特性、耐水性、耐候性、接着性、加工成形性等の向上および改善に大きな役割を果たしている。

10 【0004】しかしながら、無機材料の種類によっては、シランカップリング剤の持つ界面改質の作用効果に差があり、一部の無機材料に対してはシランカップリング剤が効果をほとんど示さないことが知られている。例えばシランカップリング剤が有効に作用する無機材料としては石英、砂、ノバキュライト等の天然シリカ；湿式法シリカ、コロイダルシリカ、シリカエアロゲル等の合成シリカ；カオリン、マイカ、タルク、ウオラストナイト、石綿等の天然ケイ酸塩；ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム等の合成ケイ酸塩；アルミナ、水和アルミナ、酸化チタン、酸化亜鉛、酸化鉄、酸化マグネシウム等の金属酸化物；アルミニウム、銅、ブロンズ等の金属、その他にフェライト系・SmCo系・NdFe系の磁性粉等の機能性無機材料等が挙げられる。これに対して、シランカップリング剤が有効に作用しないか、またはその作用効果が少ない無機材料としては、例えば炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、硫酸カルシウム、硫酸バリウム、亜硫酸カルシウム等のアルカリ土類金属の炭酸塩、硫酸塩、亜硫酸塩およびカーボンブラック等が挙げられる。

30 【0005】これまで、このような無機材料の種類によって起こるシランカップリング剤の問題点を解消するため種々の手段が提案されてきた。例えば、特公平3-17764号公報ではシランカップリング剤にアルコキシ基を有するオルガノポリシロキサンを併用することが提案されている。これは上記のシランカップリング剤の持つ欠点を解消する点では少しは効果があるものの、シランカップリング剤とオルガノポリシロキサンが無機固体粒子の表面に作用する際に、一方の成分の効果が得られても他方の成分の効果が十分に得られないという問題が生じ、その結果、複合材料の機械的特性、耐水性、耐候性、接着性、加工性、加工成形性等の面で十分満足できるものではなかった。また、特開平5-43696号公報では他の解決手段として下式で表される1分子中に加水分解基と反応性有機基を有する反応性オルガノポリシロキサンの使用が提案されている：



(式中、Y=有機反応性官能基、Z=縮合性シリルアルキル基、Q=ポリオキシアルキレン基、R=H、一価炭化水素基、ハロゲン化アルキル基、M=Y、Z、Q、R、o=0~500、p、q、r=0~200)。これは前記したシランカップリング剤の持つ欠点を解消する点ではある程度の効果を示すものの、複合材料の機械的特性、耐水性、耐候性、接着性、加工成形性等の面では特公平3-17764号公報に開示の上記手段と同様に十分満足できるものではなかった。また、無機材料と有機材料からなる複合材料の機械的特性等を向上させるために、シランカップリング剤の使用が行われていたが、さらに曲げ強度等の靱性の向上、また、複合材料の製造時における流動性を付与させるために滑剤の使用等種々の提案がされてきた。例えば特公平6-89219号公報ではシランカップリング剤処理したガラス繊維にグリセリン処理することが提案されている。この手段により曲げ強度等の靱性の向上およびスパイラルフロー等の加工成形性の向上が認められるが、処理工程が増え作業効率が低下し、無機材料への濡れ性が悪いため層間剥離を起こしやすく、また、表面に析出する現象が生じていた。さらに、近年、成形時の加工温度が上昇してきているため、グリセリンが揮発・分解し、成形材料中にボイド等が発生する等の問題点があった。さらに、特開昭60-223859号公報には、シランカップリング剤とポリジメチルシロキサンを併用する方法が記載されているが、ポリジメチルシロキサンは合成樹脂への相溶性が悪いため層間剥離を起こしやすく、しかも使用されるポリジメチルシロキサンは粘度が少なくとも2000mm²/s(cSt)以上であり取扱いが困難であった。かかる状況下に上述した従来のシランカップリング剤の持つ

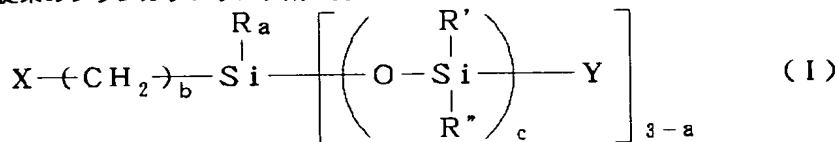
欠点の解消および得られる効果を向上させるため、従来のシランカップリング剤では効果が得られない無機材料に対しても有効であり、かつ、靱性等の機械的特性、加工成形性の改善効果が十分満足できるような処理剤の出現がFRP、FRTP、人工大理石、合成樹脂磁石、レジンコンクリート、シェルモールド、エラストマー、磁気テープ、ゴム組成物、封止材等の複合材料を製造および使用する分野で望まれていた。

【0006】

【発明が解決しようとする課題】本発明の目的は、従来のシランカップリング剤では効果が得られなかった無機材料に対しても有効である特定構造を持つシロキサンを提供することであり、また、複合材料製造時において加工成形性が向上し、かつ、成形して得られる複合材料の機械的特性、特に曲げ強度等の靱性、耐水性、耐候性が向上する特定構造を持つシロキサンで処理した無機材料と該シロキサンを含有する組成物を提供することにある。さらに、FRP、FRTP、人工大理石、合成樹脂磁石、レジンコンクリート、シェルモールド、エラストマー、磁気テープ等の複合材料、特に合成樹脂磁石、ゴム組成物、封止材等の用途で非常に有用である、上記シロキサンを使用した複合材料を提供することを本発明の目的とする。

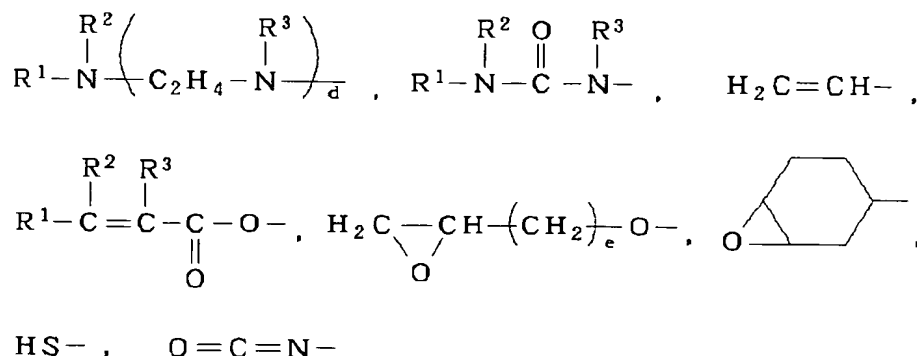
【0007】

【課題を解決するための手段】本発明者等は鋭意研究の結果、特定構造を有するシロキサンを用いることにより上記課題を解決できることを見出し、さらに検討を重ね本発明に到ったものである。すなわち、本発明は、次式1:



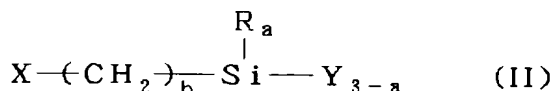
〔式中、aは0ないし2の整数、bは0ないし20の整数、cは1ないし100の整数を表し、Rは炭素原子数1ないし20のアルキル基、フルオロアルキル基、アリール基、アラルキル基、炭素原子数1ないし8のアルコキシ基、アセトキシ基またはオキシム基を表すが、2個

のRが存在する場合、それらは同じであっても、異なってもよく、R'およびR''は互いに独立して炭素原子数1ないし20のアルキル基、フルオロアルキル基、アリール基またはアラルキル基を表し、Xは次式:

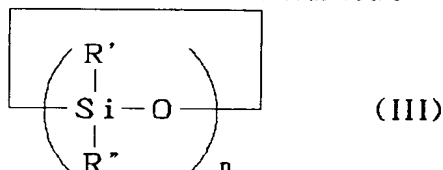


(式中、 R^1 、 R^2 および R^3 は互いに独立して水素原子、炭素原子数1ないし10のアルキル基、アリール基またはアラルキル基を表し、そして d および e は互いに独立して0ないし5の整数を表す) で表される基を表し、そして Y は炭素原子数1ないし8のアルコキシ基、アセトキシ基またはオキシム基を表す] で表されるシロキサンまたはその加水分解生成物の少なくとも1種を用いて表面処理された無機材料に関する。

【0008】本発明はまた、上記シロキサンの次式 I 20
I :



(式中、 a 、 b 、 R 、 X および Y は上で定義されたものと同じ意味を表す) で表される化合物と次式 III :



(式中、 R' および R'' は上で定義されたものと同じ意味を表し、そして n は3ないし8の整数を表す) で表される化合物との反応により得られるポリシロキサンであるか、または上記式 I 中、 R または Y の少なくとも一方がアルコキシ基を表すシロキサンである上記の表面処理された無機材料に関する。また、本発明は、上記いずれかのシロキサンと加水分解性基含有シラン化合物またはそれらの加水分解生成物を用いて表面処理された無機材料に関する。本発明はまた、上記いずれかのシロキサンまたはその加水分解生成物の少なくとも1種を用いて表面処理(表面改質とも記載される)された磁性体粉末、および上記いずれかのシロキサンと加水分解性基含有シラン化合物またはそれらの加水分解生成物を用いて表面処理された磁性体粉末に関する。さらに、本発明は、上記いずれかのシロキサンまたはその加水分解生成物の少なくとも1種、無機材料および有機材料を含有する組成物、および上記いずれかのシロキサンおよび加水分解性基含有シラン化合物またはそれらの加水分解生成物、無

機材料および有機材料を含有する組成物に関する。また、本発明は、上記いずれかのシロキサンまたはその加水分解生成物の少なくとも1種、磁性体粉末および合成樹脂を含有する合成樹脂磁石材料、および上記いずれかのシロキサンおよび加水分解性基含有シラン化合物またはそれらの加水分解生成物、磁性体粉末および合成樹脂を含有する合成樹脂磁石材料、さらには上記いずれかの合成樹脂磁石材料を成形して得られる合成樹脂磁石に関する。本発明はさらに、上記シロキサンまたはその加水分解生成物の少なくとも1種を無機充填材に対して0.01~30重量%含有するゴム組成物、および上記シロキサンまたはその加水分解生成物の少なくとも1種を無機充填材に対して0.01~30重量%含有する封止材用樹脂組成物に関する。

【0009】

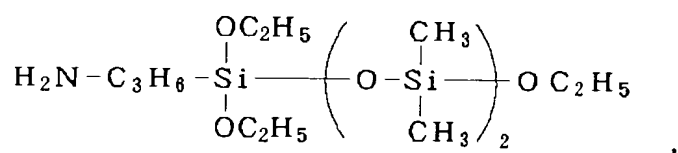
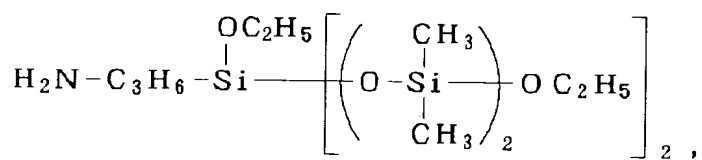
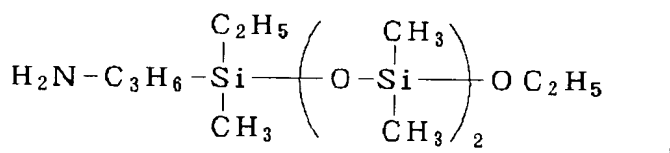
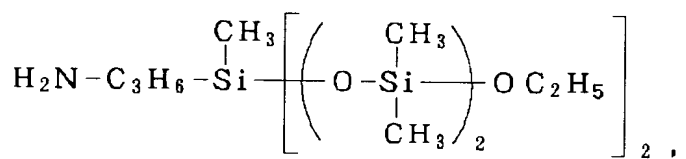
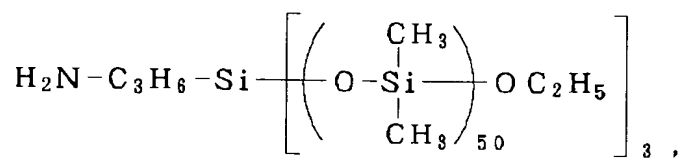
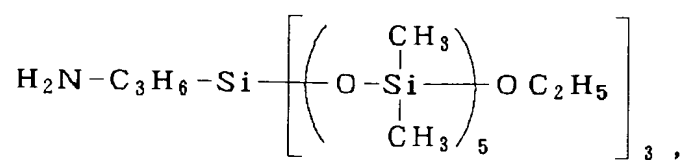
【発明の実施の形態】本発明において使用されるシロキサンは上記式 I で表される化合物である。以下に式 I 中の各置換基について説明する。 R は炭素原子数1ないし20のアルキル基、例えばメチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、ブチル基、第二ブチル基、第三ブチル基、ペンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、オクチル基、ノニル基、デシル基、ドデシル基、オクタデシル基、イコシル基またはそれらの異性体；フルオロアルキル基、例えば少なくとも1個のフッ素原子で置換された上記アルキル基、例として $-C_2H_4CF_3$ 、 $-C_2H_4CF_2CF_3$ 等；アリール基、例えばフェニル基、トリル基、キシリル基、ナフチル基等；アラルキル基、例えばベンジル基、フェネチル基、フェニルプロピル基等；炭素原子数1ないし8のアルコキシ基、例えばメトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、イソプロポキシ基、ブトキシ基、イソブトキシ基、第三ブトキシ基、ペントキシ基、ヘキソキシ基、オクトキシ基；アセトキシ基またはオキシム基〔次式： $R_1R_2C=NO-$ (式中、 R_1 および R_2 は互いに独立して水素原子または上記アルキル基を表す) で表される基〕である。また、 a は0ないし2の整数、 b は0ないし20、好ましくは0ないし6、特に好ましくは2または3の整数、 c は1ないし100、好ましくは1ないし50、特に好ましくは1ないし10の整数である。なお、 a が2である場合、

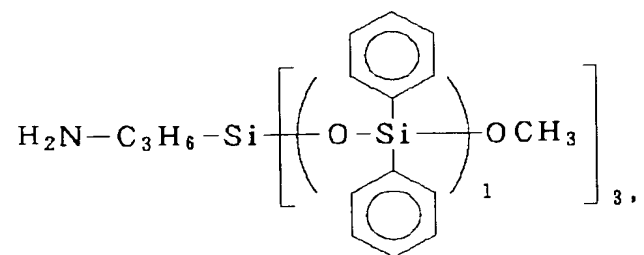
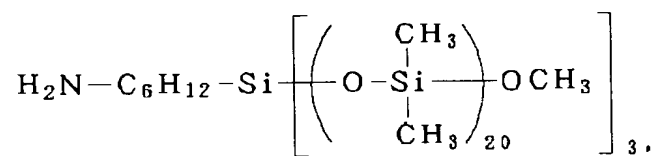
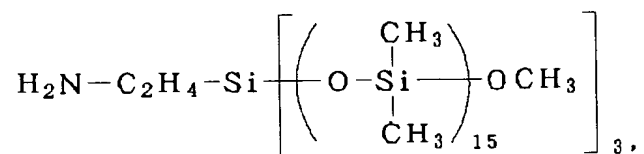
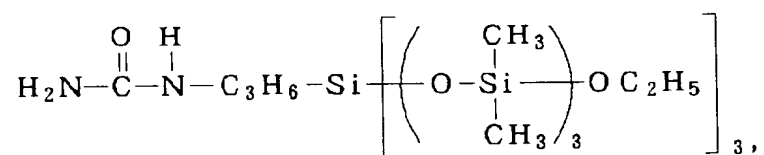
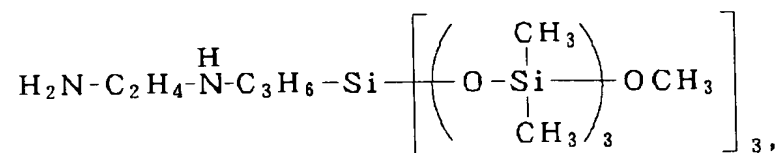
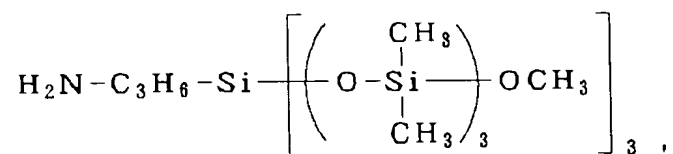
2つのRは同じであっても、異なってもよい。R'およびR''は互いに独立して炭素原子数1ないし20のアルキル基、フルオロアルキル基、アリール基またはアラルキル基であり、具体例としてはいずれもRに対して例示したものを挙げることができる。Xは具体的にはビニル基、アミノ基、ジアミノ基、トリアミノ基、ウレイド基、アクリル基、メタクリル基、エポキシ基、環状エポキシ基、メルカプト基またはイソシアネート基等である。Yは炭素原子数1ないし8のアルコキシ基、アセトキシ基またはオキシム基であり、具体例としてはいずれもRに対して例示したものを挙げることもできる。

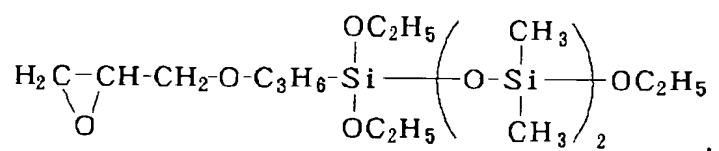
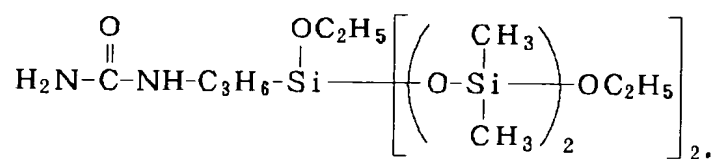
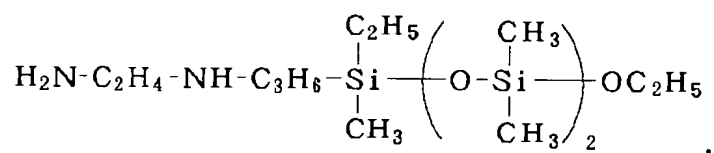
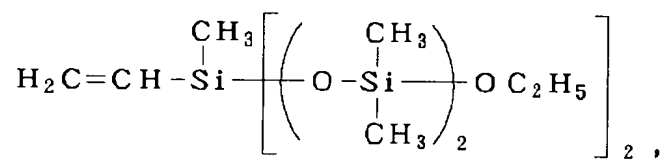
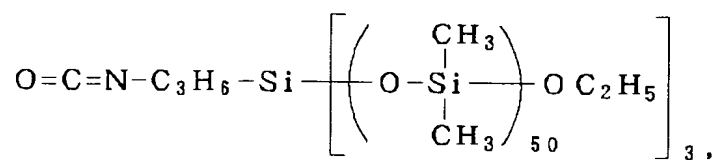
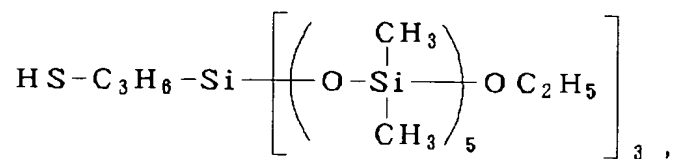
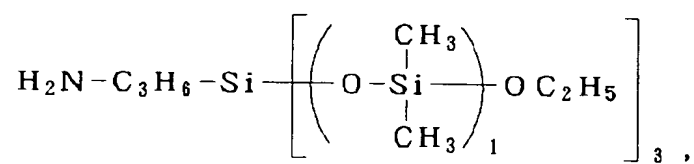
【0010】上記式Iで表されるシロキサン中のシロキサン基(—Si—O—)の数はcの値で決まる。このシロキサンの物性を考慮した場合、cの値は上記したよう

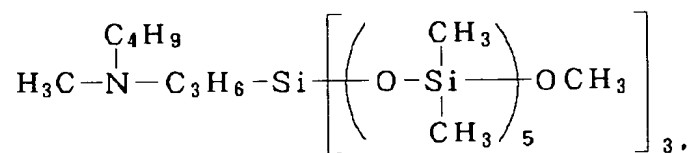
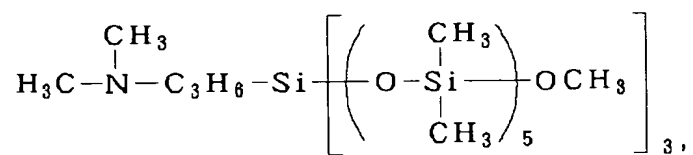
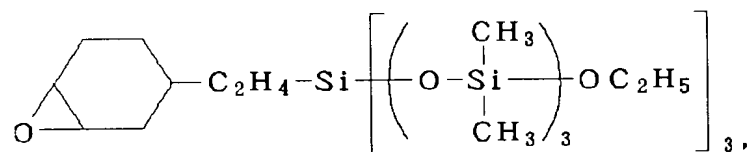
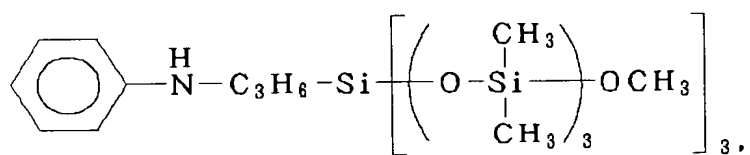
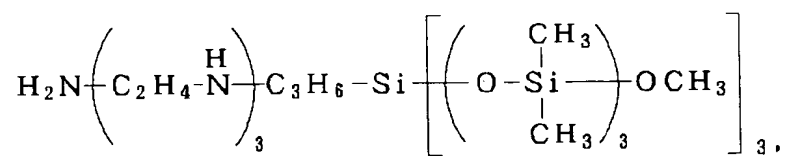
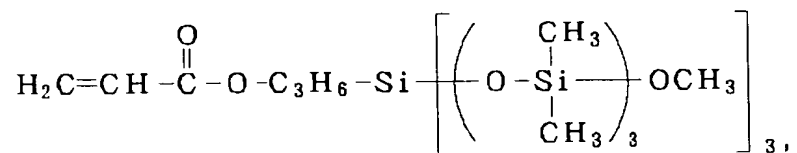
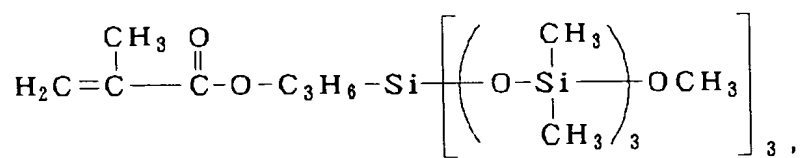
に、1ないし100の整数である。cの値が大きすぎると、シロキサンの分子量が大きくなり、高粘度となるため取扱性が悪くなるばかりでなく、無機材料表面への移行性が悪くなるので好ましくない。また、本発明において使用されるシロキサンは、1分子中に少なくとも1個のアルコキシ基を有することが望ましい。特に、得られる複合材料の機械的強度を考慮した場合、1分子中に2個以上のアルコキシ基の存在が好ましい。アルコキシ基が少ない場合、無機材料との反応性が悪くなり、しかも無機材料中の分散性が低下するので好ましくない。

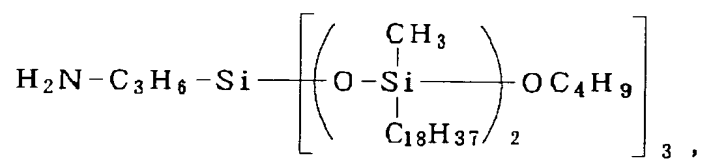
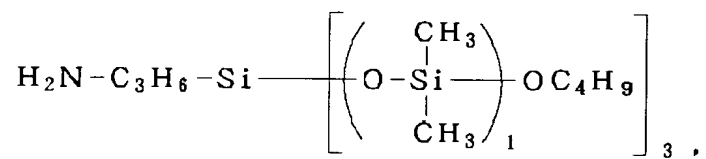
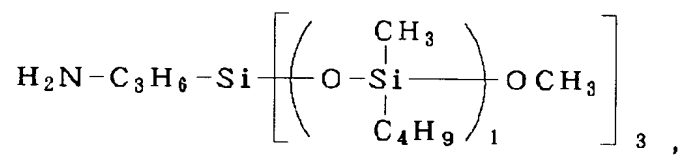
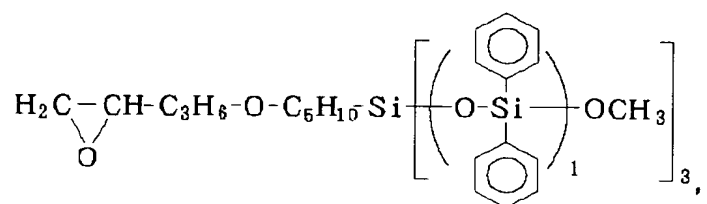
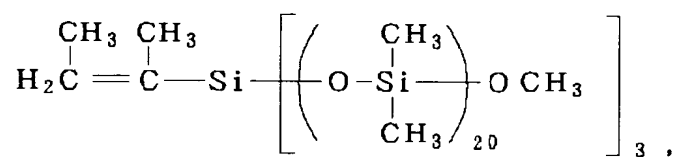
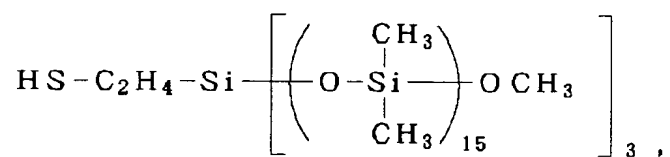
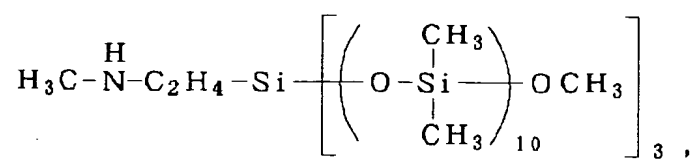
【0011】上記式Iで表されるシロキサンの具体例として以下のものを挙げることもできるが、本発明はこれらに限定されない：

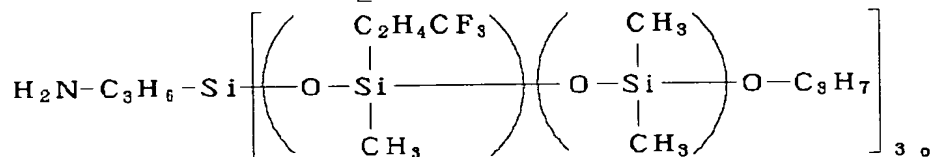
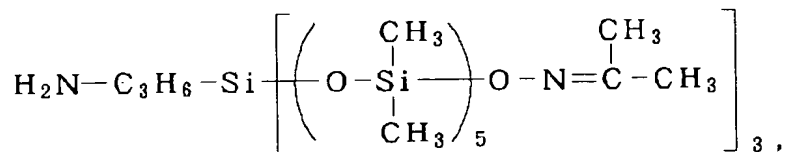
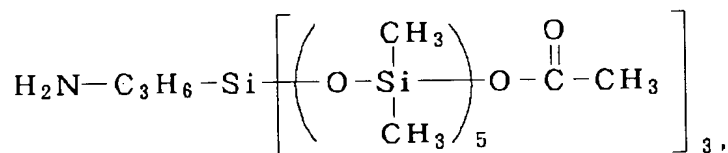
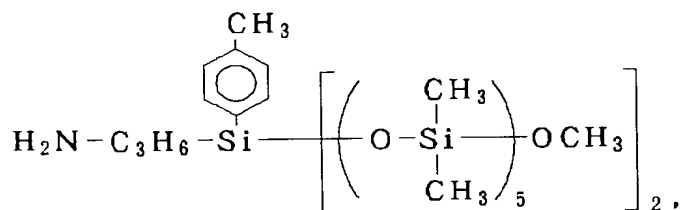
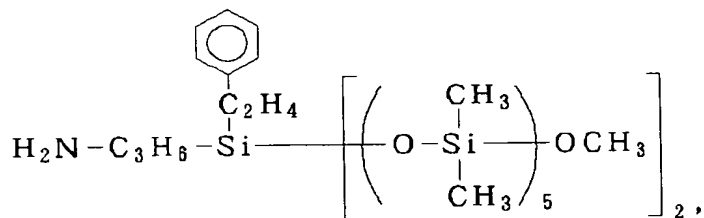
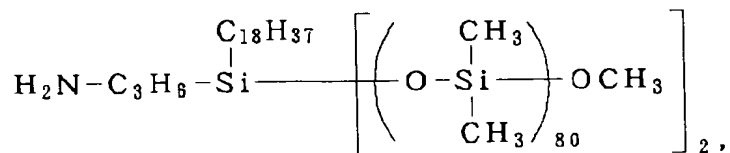
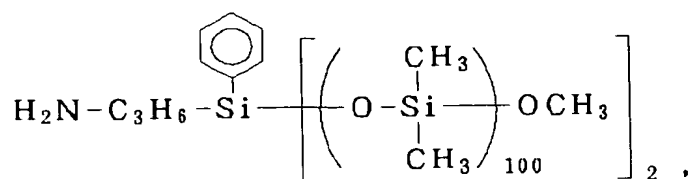












【0012】本発明において使用される式Iで表される特定構造のシロキサンは、種々の方法により製造することができ、その方法は特に限定されないが、例えば上記式Iで表される化合物と上記式IIで表される化合物とをアルカリ性化合物または酸性化合物の存在下で反応させることにより製造することができる。

【0013】上記式Iで表される化合物は公知化合物であり、各置換基の具体例は式Iに対して列挙したものである。式Iで表される化合物の具体例としては、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、

50
ビニルメチルジメトキシシラン、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、γ-アミノプロピルメチルジエトキシシラン、N-(β-アミノエチル)-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(β-アミノエチル)-γ-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-フェニルアミノプロピルトリメトキシシラン、N-(β-アミノエチル-N')-(γ-トリメトキシシリルプロピル)エチレンジアミン、γ-ウレイドプロピルトリエトキシシラン、γ-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、γ-メルカ

ブトプロピルトリエトキシシラン、γ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、γ-メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、γ-メタクリロキシプロピルメチルジメトキシシラン、γ-イソシアネートプロピルトリメトキシシラン、γ-イソシアネートプロピルトリエトキシシラン等を挙げることができる。

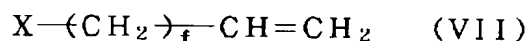
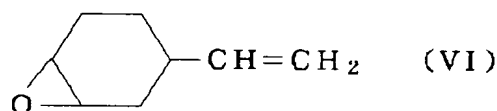
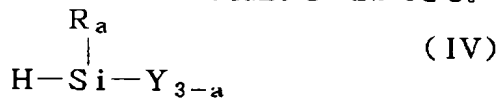
【0014】本発明におけるシロキサンを製造するための、もう一方の原料である式ⅠⅠⅠで表される化合物は重合度3～8の環状ポリシロキサンであり、これもまた公知化合物である。式ⅠⅠⅠ中、R' およびR" の具体例としてはRに対して例示したものを挙げることができる。式ⅠⅠⅠで表される化合物の具体例としては、1, 1, 3, 3, 5, 5-ヘキサメチルシクロトリシロキサン、1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7-オクタメチルシクロテトラシロキサン、1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7-オクタエチルシクロテトラシロキサン、1, 3, 5, 7-テトラエチル-1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサン、1, 3, 5, 7-テトラメチル-1, 3, 5, 7-テトラフェニルシクロテトラシロキサン、1, 3, 5, 7-テトラベンジル-1, 3, 5, 7-テトラメチルシクロテトラシロキサン、1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7, 9, 9, 11, 11-ドデカメチルシクロヘキサシロキサン、1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7, 9, 9, 11, 11, 13, 13-テトラデカメチルシクロヘプタシロキサン、1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7, 9, 9, 11, 11, 13, 15, 15-ヘキサデカメチルシクロオクタシロキサン等を挙げることができる。

【0015】式ⅠⅠで表される化合物と式ⅠⅠⅠで表される化合物とを反応させる際に使用されるアルカリ性化合物としては、水酸化ナトリウム、水酸化カリウム、ナトリウムメトキシド、ナトリウムエトキシド、テトラメチルアンモニウムヒドロキシド、テトラ-n-ブチルホスホニウムヒドロキシド等が挙げられる。また、酸性化合物の具体例としては、硫酸、塩酸、リン酸、活性白土、塩化鉄等が挙げられる。この際の反応条件としては通常採用されている条件ならば特に限定されないが、例えば水酸化カリウムを使用する場合、反応温度90ないし150℃、反応時間3ないし24時間が望ましく、また、硫酸を使用する場合は反応温度0～40℃、反応時間0.5～12時間が望ましい。上記アルカリ性化合物または酸性化合物は上記反応を押し進める上で一定量の存在を必要とするが、その使用量は式ⅠⅠで表される化合物と式ⅠⅠⅠで表される化合物との合計量に対して0.001ないし10重量%程度が望ましい。

【0016】式ⅠⅠで表される化合物と式ⅠⅠⅠで表される化合物との反応生成物は反応終了後、常法に従い精製される。すなわち、上記アルカリ性化合物または酸性化合物の残留物を中和し、生成した塩を濾過するか、または加熱分解して分解物を減圧下にて留去する等の方法

により除去する。また、未反応の原料は必要に応じて留去される。

【0017】また、本発明におけるシロキサンは上記した製法例の他に、次の製法でも製造することができる。例えば、上記式ⅠⅠⅠおよび下式ⅠⅤで表される化合物を用いて前記反応を行うことにより得られる生成物と下式ⅠⅥ～ⅠⅧで表される化合物とを触媒の存在下、反応温度10～150℃、反応時間0.5～100時間で付加反応させることにより製造することができる。



(式中、R、X、Yおよびaは上で定義したものと同一意味を表し、そしてfは0～18の整数を表す)。上記の製法に用いられる化合物の一つである式ⅠⅧⅠで表される化合物の具体例としてアリルグリシジルエーテル、アリルメタクリレート、アリルアクリレート等を挙げることができるが、それらに限定されない。さらに、上記触媒としてはNi、Rh、Pd、Pt等の第8族の遷移金属もしくはそれらの化合物または錯体を用いることができる。塩化白金酸等の白金触媒が比較的安価に入手できるため、これを用いることが好ましい。

【0018】加水分解性基含有シラン化合物

本発明において上記の新規シロキサンと共に用いられるもよい加水分解性基含有シラン化合物は一般的にシランカップリング剤として広く市販されているものが使用できる。例えば、ビニルトリメトキシシラン、ビニルトリエトキシシラン、ビニルメチルジメトキシシラン、ビニルトリス(メトキシエトキシ)シラン、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、γ-アミノプロピルメチルジエトキシシラン、N-(β-アミノエチル)-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、N-(β-アミノエチル)-γ-アミノプロピルメチルジメトキシシラン、N-フェニルアミノプロピルトリメトキシシラン、N-(β-アミノエチル)-N'-(γ-トリメトキシシリルプロピル)エチレンジアミン、γ-ウレイドプロピルトリエトキシシラン、γ-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、γ-メルカプトプロピルトリエトキシシラン、γ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、γ-メタクリロキシプロピルトリエトキシシラン、γ-メタクリロキシ

10

20

30

40

50

プロピルメチルジメトキシシラン、 β -（3，4-エポキシクロヘキシル）エチルトリメトキシシラン、 β -（3，4-エポキシクロヘキシル）エチルトリエトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルトリエトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、 γ -グリシドキシプロピルメチルジエトキシシラン、 γ -イソシアネートプロピルトリメトキシシラン、 γ -イソシアネートプロピルトリエトキシシラン等が挙げられる。また、ビス（3-トリエトキシシリルプロピル）テトラ 10 スルファン、ビス（3-トリメトキシシリルプロピル）テトラスルファン、ビス（3-トリエトキシシリルプロピル）ジスルファン、ビス（3-トリメトキシシリルプロピル）ジスルファン、ビス（3-トリエトキシシリルプロピル）アミン、ビス（3-トリメトキシシリルプロピル）アミン、N，N'-ビス〔3-（トリメトキシシリル）プロピル〕エチレンジアミン、N，N'-ビス〔3-（トリエトキシシリル）プロピル〕エチレンジア 20 ミン等も使用可能である。さらに、有機材料との反応性は持たないが、相溶性の官能基を持つアルコキシシランも有効である。具体的な例として、例えばメチルトリエトキシシラン、メチルトリメトキシシラン、n-プロピルトリメトキシシラン、n-プロピルトリエトキシシラン、n-ヘキシルトリエトキシシラン、n-ヘキシルトリメトキシシラン、n-オクチルトリメトキシシラン、n-オクチルトリエトキシシラン、フェニルトリメトキシシラン、フェニルトリエトキシシラン、ポリエーテル変性トリメトキシシラン、ポリエーテル変性トリエトキシシラン、1，3，5-N-トリス（トリメトキシシリルプロピル）イソシアヌレート、ジメチルジメトキシシ 30 ラン、ジメチルジエトキシシラン、ジフェニルジメトキシシラン、ジフェニルジエトキシシラン等が挙げられる。上記加水分解性基含有シラン化合物は使用される有機材料である合成樹脂やエラストマーの種類によって適宜選択される。

【0019】加水分解生成物

本発明において加水分解生成物とは、本発明の式1で表されるシロキサンまたは該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物とを、少量の酸触媒、例えば酢酸、硫酸 40 または塩酸等の存在下、低級アルコール、例えばメタノール、エタノール、イソプロパノール、ブタノール等を主とする溶剤中で水を添加しながら、アルコキシ基等を加水分解し、ケイ素原子に結合した水酸基を有するシリコーン化合物としたものを意味する。また、上記生成した水酸基の一部は更に脱水縮合してシロキサン結合を形成する。本発明においてはそのように生成した縮合物も加水分解生成物に包含される。なお、上記加水分解反応により得られる生成物は通常多種類の混合物となっており、その分子量は酸触媒の量や水の添加量を調整することにより適宜制御できる。本発明において、加水分解 50

生成物が表面処理材として使用される場合、少なくとも1種を単独で使用しても、また少なくとも1種の加水分解生成物を少なくとも1種の式1で表されるシロキサン、所望により加水分解性基含有シラン化合物と組み合わせ 10 せて使用してもよい。

【0020】無機材料

本発明で用いられる無機材料は射出成形積層、トランスファー成形、圧縮成形、コーティング、注型等の各種成形またはコーティング加工において使用されるために適した無機固体粒子であって、具体的にはシリカ、コロイダルシリカ、珪藻土、アルミナ、酸化亜鉛、酸化チタン、酸化カルシウム、酸化マグネシウム、酸化鉄、フェライト等の酸化物；水酸化カルシウム、水酸化マグネシウム、水酸化アルミニウム等の水酸化物；炭酸カルシウム、炭酸マグネシウム、炭酸亜鉛、炭酸バリウム等の炭酸塩；硫酸カルシウム、硫酸バリウム、亜硫酸カルシウム、石膏繊維等の硫酸および亜硫酸塩；ケイ酸カルシウム、ケイ酸アルミニウム、ウオラストナイト、タルク、クレイ、マイカ、モンモリロナイト、カオリン、石綿、ベントナイト、活性白土、砂、ガラス繊維、ガラスビー 20 ズ、ガラスフレーク、シリカ系バルーン等のケイ酸塩；アルミニウム、銅等の金属；カーボンブラック、グラファイト、炭素繊維等の炭素類、並びにチタン酸カリウム、ステンレス繊維、ホウ酸亜鉛、各種磁性体粉末（これを用いる場合については下で詳しく説明する）、チタン酸ジルコン酸鉛等が挙げられる。本発明において使用される無機充填材もまた特に制限されず、上記無機材料の中から適宜選択される。そして、本明細書では無機充填材は無機材料に包含されるものとして説明されている。例えば、ゴム組成物のための無機充填材としてはカーボンブラック、ホワイトカーボン、クレイ、炭酸カルシウム、硫酸バリウム、炭酸マグネシウム、亜鉛華等が 30 挙げられ、そして封止材用樹脂組成物のためにはカオリン、タルク、シリカ粉末、ガラス粉末、ケイ酸カルシウム、チタン酸カルシウム等が挙げられる。

【0021】有機材料

本発明で使用される有機材料としては、例えばポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、ポリスチレン、ABS樹脂、AS樹脂、メタクリル樹脂、ポリビニルアルコール、ポリ塩化ビニリデン、ポリエチレンテレフタレート、ポリブチレンテレフタレート、ポリアミド、ポリアセタール、ポリカーボネート、変性フェニルエーテル、ポリサルホン、ポリエーテルサルホン、ポリフェニレンサルファイド、ポリアリレート、ポリアミドイミド、ポリエーテルイミド、ポリエーテルケトン、ポリイミド、ポリエステル、ポリテトラフルオロエチレン、フェノール樹脂、尿素樹脂、メラミン樹脂、アルキド樹脂、不飽和ポリエステル樹脂、エポキシ樹脂、ジアリルフタレート樹脂、ポリウレタン、シリコーン樹脂、セルロース、フッ素樹脂、フラン樹脂、ニトリル樹脂、 50

ポリアミド樹脂等の合成樹脂、ブタジエンゴム、イソブレンゴム、クロロブレンゴム、スチレン-ブタジエン共重合ゴム、イソブチレン-イソブレン共重合ゴム、アクリロニトリル-ブタジエン共重合ゴム、エチレン-プロピレン共重合ゴム等の合成ゴムおよび天然ゴム、羊毛、麻、絹、木綿等の天然繊維、木材、紙等の植物加工品等を挙げることができる。

【0022】組成物

無機材料は本発明の特定構造を有するシロキサンまたは該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物とで表面処理される。処理手順は限定されないが、無機材料をシランカップリング剤で処理する従来方法により行うことができる。例えば、シロキサンまたは該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物とで直接無機材料を処理する方法（直接処理法）や、有機材料と無機材料との混練時にシロキサンまたは該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物とを添加して、無機材料の表面処理と有機材料への配合を同時に行う方法（インテグラルブレンド法）等が利用できる。直接処理法は上記シロキサンと無機材料または上記シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物と無機材料を混合攪拌することにより行われるが、予め、シロキサンまたは該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物を有機溶媒や水系溶媒等の希釈剤に溶解または分散させて使用することが望ましい。例えば希釈剤としてアルコール系溶媒またはアルコール水溶液を用いることが好ましい。また、シロキサンまたは該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物は、予め加水分解生成物としてから用いてもよい。上記の混合攪拌を行う装置は特に限定されないが、ヘンシェルミキサー、V型ミキサー、スーパーミキサー等が使用できる。大きくシェアが加えられるヘンシェルミキサー等の混合機を使用すれば希釈剤を使用しなくとも混合は十分に可能である。また、回転ボールミル、振動ボールミル、ジェットミル等の粉碎機を用いて添加混合する方法も有効である。希釈剤を用いて混合攪拌する場合、混合攪拌の後、希釈剤を除去しながら加熱処理を行うことにより無機材料表面にシロキサンまたは該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物を十分に反応させる方法が有効である。この際の温度は200℃以下が好ましく、常圧下、減圧下または加圧下のいずれでもよいが、熱処理と同時に希釈剤を除去する場合は常圧以下で行うのが好ましい。特に、希釈剤なしでの混合攪拌は、混合攪拌中に加熱して上記シロキサンと無機材料または該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物と無機材料との縮合反応を進行させることが好ましい。また、攪拌熱で縮合反応を進行させることも可能である。本発明の組成物で使用されるシロキサンまたは該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物の使用量は、無機材料に対して0.01～30.0重量%であることが望ましく、特に望ましくは0.1～10.0重量%である。使用量が0.01重

量%より少ないと複合材料の機械的強度、加工成形性の向上効果が十分に得られず、30.0重量%よりも多いと曲げ強度等の機械的物性が低下することがある。さらに、本発明のシロキサンを加水分解性基含有シラン化合物と併用する場合、シロキサン/加水分解性基含有シラン化合物の重量比は100/1～1/100であることが好ましい。シロキサン/加水分解性基含有シラン化合物の重量比が1/100よりも小さい場合（加水分解性基含有シラン化合物が多い場合）、アルカリ土類金属の炭酸塩、硫酸塩、亜硫酸塩およびカーボンブラックに対して処理効果がほとんど無くなる傾向がある。

【0023】本発明のシロキサンまたは該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物により表面処理された無機材料は各種有機材料と混合・攪拌・混練することにより複合材料とすることができる。有機材料は前記したものの中から1種以上のものを適宜選択して使用することができる。混合・攪拌・混練する装置は特に限定されるものではなく、バッチ式ニーダー、バンバリーミキサー、ヘンシェルミキサー、ロール、一軸押出機、二軸押出機等が挙げられる。先に無機材料を上記シロキサンまたは該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物で処理することが効果的であるが、予め樹脂に上記シロキサンまたは該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物を添加しておく方法や混練時に上記シロキサンと無機材料および有機材料または上記シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物と無機材料および有機材料を混練する方法も有効である。また、混練時に各種添加剤や補助資材を加えることも可能である。各種添加剤や補助資材として安定剤、酸化防止剤、紫外線吸収剤、光安定剤、帯電防止剤、滑剤、加工性改良剤、分散剤、中和剤、発泡剤、気泡防止剤、着色剤、架橋助剤等が挙げられ、より具体的に例えばジメチルポリシロキサン、ポリジメチルシロキサンとポリオキシアルキレンとのグラフトまたは交互ブロック共重合体、反応性有機官能基変性ジメチルポリシロキサン（例えばアミノ変性、エポキシ変性、アクリル変性、メルカプト変性等）等である。混練は-50～400℃の温度領域で行われるが、有機材料が熱硬化性樹脂の場合、樹脂の硬化が進まない温度領域を選択する。混合物に溶剤を添加している場合は混練と同時に溶媒回収を行う方法が有効である。なお、混練工程は必要でなく、スプレードライ等を用いて無機材料表面を処理したり、造粒体を形成させて成形時の加工性の良い材料とする方法も有効である。

【0024】本発明における特定構造のシロキサンは有機材料と反応する官能基と無機材料と反応する官能基とを併せ持つため、シランカップリング剤と同様の性能を発揮するばかりでなく、さらに特別な分子骨格を有するため、シランカップリング剤の性能を発揮しにくかった材料に対しても有効にその性能を発揮することができる。さらに、本発明の特定構造のシロキサンを配合した

組成物はそれぞれの分野で行われている公知の加工方法によりさらに加工し使用できる。加工して得られた成形材料はその機械的特性、耐水性、耐候性、接着性、加工成形性等が改善されるため、特に無機材料と有機材料とを組み合わせたFRP、F RTP、人工大理石、合成樹脂磁石、レジンコンクリート、シェルモールド、エラストマー、磁気テープ等の各種複合材料の分野、特に合成樹脂磁石、ゴム組成物、封止材等を製造および使用する分野で有用である。

【0025】磁性体粉末、合成樹脂磁石材料、合成樹脂磁石

本発明において使用される磁性体粉末は慣用の磁性体粉末、例えばストロンチウムフェライト、バリウムフェライト等のハードフェライト系磁石粉末、アルニコ系磁石粉末、希土類・鉄・ホウ素系磁石粉末である。本発明の表面改質された磁性体粉末を製造する場合、上記式1で表されるシロキサンと磁性体粉末との配合比は適宜選択し得るが、一般的には、シロキサン0.05~10.00重量%、磁性体粉末99.5~90.00重量%の範囲が好ましく、特にシロキサン0.3~5.00重量%、磁性体粉末99.7~95.0重量%の範囲が特に好ましい。シロキサンが少ない場合、合成樹脂との混練および成形時において磁性体粉末の分散性が著しく低下し、成形加工性の改善が得られず、また磁気特性の向上効果が薄い。一方、シロキサンが多過ぎる場合、製品外観が低下するほか、曲げ強度等の機械的物性が低下し、望ましくない。

【0026】磁性体粉末の表面改質は通常この分野で行われている公知の方法で行われ得る。例えば、上記シロキサンと磁性体粉末を混合攪拌することにより行われるが、予めシロキサンを有機溶媒や水系溶媒等の希釈剤に溶解または分散した後に混合攪拌を行うことが好ましい。この場合の希釈剤としてはアルコール系溶媒またはアルコール水溶液が用いられる。また、磁性体粉末の表面改質処理に際し、添加剤、例えばシランカップリング剤やそのオリゴマー、ジメチルポリシロキサン、ポリジメチルシロキサンとポリオキシアルキレンとのグラフトまたは交互ブロック共重合体、反応性有機官能基変性ジメチルポリシロキサン（例えばアミノ変性、エポキシ変性、アクリル変性、メルカプト変性等）等、滑剤、脂肪酸およびその塩等を併用してもよい。上記の混合攪拌を行う装置は特に限定されないが、ヘンシェルミキサー、V型ミキサー、スーパーミキサー等が使用できる。大きくシェアが加えられるヘンシェルミキサー等の混合機を使用すれば希釈剤を使用しなくとも混合は十分に可能である。また、回転ボールミル、振動ボールミル、ジェットミル等の粉碎機を用いて混合攪拌することもできる。

【0027】希釈剤を用いて混合攪拌する場合、混合攪拌の後、希釈剤を除去しながら加熱処理を行うことにより磁性体粉末表面にシロキサンを十分に反応させる方法

が有効である。希釈剤なしで、または希釈剤と共に混合攪拌する場合の温度は200℃以下が好ましく、常圧下、減圧下または加圧下のいずれでもよいが、熱処理と同時に希釈剤を除去する場合は常圧以下で行うのが好ましい。また、希釈剤なしでの混合攪拌は、混合攪拌機または粉碎機中で加熱してシロキサンと磁性体粉末との縮合反応を進行させることが好ましい。なお、積極的な加熱を行うことなしに、攪拌熱で縮合反応を進行させることも可能である。混合攪拌の継続時間は適宜選択される。

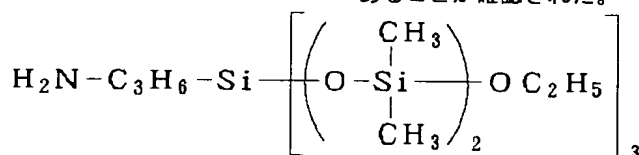
【0028】上記シロキサン、磁性体粉末および合成樹脂からなる合成樹脂磁石材料もまた本発明を構成する。この合成樹脂磁石材料は、上に記載した表面改質した磁性体粉末と合成樹脂の混合物をバッチ式ニーダー、バンバリーミキサー、ヘンシェルミキサー、ロール、1軸押出機、2軸押出機等を用いて-50~300℃の温度領域で混合・攪拌・混練して得ることができる。このように予め磁性体粉末をシロキサンで処理しておくことが好ましいが、合成樹脂にシロキサンを添加しておき、これを磁性体粉末と混合する方法や、未処理の磁性体粉末、シロキサンおよび合成樹脂を混練する方法を採用することもでき、上記3成分が混合される方法であれば、その方法は制限されない。また、合成樹脂磁石材料にも、添加剤、例えばシランカップリング剤、アルコキシシランおよびそれらの加水分解生成物、ジメチルポリシロキサン、ポリジメチルシロキサンとポリオキシアルキレンとのグラフトまたは交互ブロック共重合体、反応性有機官能基変性ジメチルポリシロキサン（例えばアミノ変性、エポキシ変性、アクリル変性、メルカプト変性等）等、滑剤、脂肪酸およびその塩等を加えてもよい。

【0029】本発明において使用される合成樹脂は特に制限されないが、従来合成樹脂磁石に使用されているいずれの合成樹脂も使用でき、熱可塑性樹脂であっても熱硬化性樹脂であってもよい。具体的には、ポリアミド、ポリエステル、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル、ポリ酢酸ビニル、ポリブタジエン、ポリフェニレンスルフィド（PPS）、ポリフェニレンオキシド（PPO）、フッ素樹脂、エポキシ樹脂、ウレア樹脂、メラミン樹脂、ポリイミド、ポリウレタン、アクリル樹脂、ABS樹脂、ポリスチレン、フェノール樹脂、フラン樹脂、ポリカーボネート、ポリアセタール、シリコン樹脂またはそれらの変性物等を単独で、または組み合わせて使用できる。熱硬化性樹脂を用いる場合、混練温度は該樹脂の硬化が進行しない温度領域を選択する。合成樹脂磁石材料の製造の際に、溶剤を添加している場合は混練と同時に溶剤回収を行うことが有効である。なお、混練工程を行わずに、スプレードライ等を用いて磁性体粉末を処理したり、粒体を形成させて成形時に加工性の良好な材料とする方法等も有効である。本発明の合成樹脂磁石材料の形態は特に制限されないが、上記のように

して各材料および必要に応じて配合される添加剤を加熱混練後、切断しペレット形状であることが、使用性等の点から好ましい。また、成形加工性等の点から、上記のようにスプレードライ等により得られる粒体であってよい。

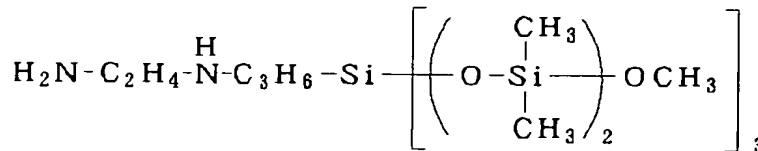
【0030】本発明の合成樹脂磁石材料は、主としてエレクトロニクス分野で使用される。本発明の合成樹脂磁石材料をこれらの用途に使用する場合、該材料はそれぞれ分野で行われている公知の加工方法により処理され得る。例えば、上記材料に成形処理を施して合成樹脂磁石を製造することができる。中でも高い磁気特性を有する合成樹脂磁石を製造する方法としては、磁場をかけながら行う圧縮成形、押出成形、射出成形等のいずれかの方法が挙げられる。特に圧縮成形法では表面平滑性および磁気特性に優れた合成樹脂磁石が得られる。成形体は通常、さらに着磁を行って永久磁石としての性能を高める。着磁は慣用の方法、例えば静磁場を発生させる電磁石、パルス磁場を発生するコンデンサー着磁器等によって行われる。着磁を十分に行うための磁場強度は好ましくは10kOe以上、さらに好ましくは30kOe以上である。本発明の上記合成樹脂磁石材料から得られる合成樹脂磁石もまた本発明を構成する。本発明の合成樹脂磁石は、エレクトロニクス分野を始めとする各種分野においてマグネットロール、モーター、スイッチ等として使用され得る。

【0031】



【0033】合成例2

合成例1で使用したγ-アミノプロピルトリエトキシランに代えてN-(β-アミノエチル)-γ-アミノプロピルトリエトキシラン99.9g、また1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7-オクタメチルシクロテトラシロキサンを200.1g使用した以外、合成例1と同様に反応を行った。得られた生成物の物性値を測定したところ、屈折率1.425、アミノ当量321（理論値334）であった。また、この生成物の¹H-NMRの分



【0034】合成例3

攪拌機、温度計、還流冷却器、窒素導入管を備えた1リットルの4つ口セパラブルフラスコに、ビニルトリエトキシラン89.9g、1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7-オクタメチルシクロテトラシロキサン210.1

【実施例】次に実施例に基づいて本発明を具体的に説明するが、本発明はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0032】シロキサン合成例

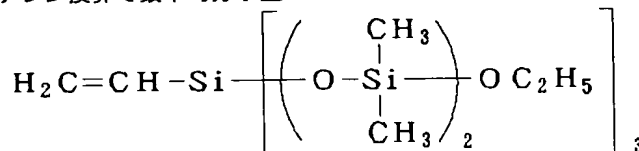
合成例1

攪拌機、温度計、還流冷却器、窒素導入管を備えた500ミリリットルの4つ口セパラブルフラスコに、γ-アミノプロピルトリエトキシラン99.7g、1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7-オクタメチルシクロテトラシロキサン200.3g、25%ナトリウムメトキシド0.48gを加え、150℃で5時間攪拌した。50℃以下に冷却後、氷酢酸を0.24g加えて1時間さらに攪拌し、次いで減圧加熱下で未反応物を除去した後、濾過を行い生成物を得た。得られた生成物の物性値を測定したところ、屈折率1.402、アミノ当量650（理論値665）であった。また、この生成物の¹H-NMRの分析では次のようなスペクトルが観測された：δ（ppm）0.3（36H, Si-CH₃）、0.7（2H, Si-CH₂）、1.9（2H, Si-C-CH₂）、2.0H（9H, O-C-CH₃）、3.0（2H, N-CH₂）、4.0（6H, Si-OC-CH₂）。上記生成物のGPCによる分析を行ったところ、スチレン換算で数平均分子量600のピークを示した。以上のことから、得られた生成物は次の平均構造を有するシロキサン（以下、シロキサンAと記載する）であることが確認された。

析では次のようなスペクトルが観測された：δ（ppm）0.3（36H, Si-CH₃）、0.7（2H, Si-CH₂）、3.0（6H, N-CH₂）、3.8（9H, Si-OCH₃）。上記生成物のGPCによる分析を行ったところ、スチレン換算で数平均分子量600のピークを示した。以上のことから、得られた生成物は次の平均構造を有するシロキサン（以下、シロキサンBと記載する）であることが確認された。

g、水酸化カリウム0.5gを加え、100℃で6時間、還流攪拌した。反応液を冷却した後、酢酸を1.5g加えて攪拌し、減圧下で未反応物を除去した後、濾過した。このようにして屈折率1.402の生成物を得た。また、この生成物の¹H-NMRの分析では次のよ

うなスペクトルが観測された： δ (ppm) 0.3 (36H, Si-CH₃), 2.0 (9H, Si-O-C-CH₃), 4.0 (6H, Si-OCH₂), 6.1 (3H, CH₂=CH-Si)。上記生成物のGPCによる分析を行ったところ、スチレン換算で数平均分子量

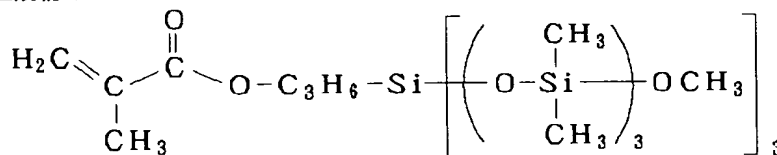


【0035】合成例4

攪拌機、温度計、還流冷却器、窒素導入管を備えた1リットルの4つ口セパラブルフラスコに、 γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン81.4g、1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7-オクタメチルシクロテトラシロキサン218.6g、硫酸9gを加え、常温にて7時間、攪拌した。炭酸水素ナトリウムを45g加えて攪拌し、減圧下で未反応物を除去した後、濾過した。得られた生成物の物性値を測定したところ、屈折率1.411であった。また、この生成物の¹H-NMRの分析では

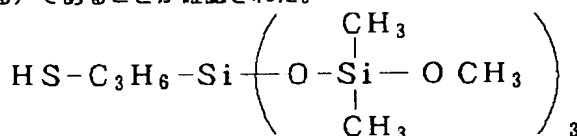
650のピークを示した。また、この化合物をIRで分析したところ、1600cm⁻¹にビニル基に帰属される吸収を有していた。以上のことから、得られた生成物は次の平均構造を有するシロキサン（以下、シロキサンCと記載する）であることが確認された。

次のようなスペクトルが観測された： δ (ppm) 0.3 (54H, Si-CH₃), 0.7 (2H, Si-CH₂), 2.0 (5H, Si-C-CH₂, C=CCH₃-CO), 3.5 (9H, Si-OCH₃), 4.2 (2H, COO-CH₂-C), 5.6 (1H, CH₂=C), 6.2 (1H, CH₂=C)。上記生成物のGPCによる分析を行ったところ、スチレン換算で数平均分子量900のピークを示した。以上のことから、得られた生成物は次の平均構造を有するシロキサン（以下、シロキサンDと記載する）であることが確認された。



【0036】合成例5

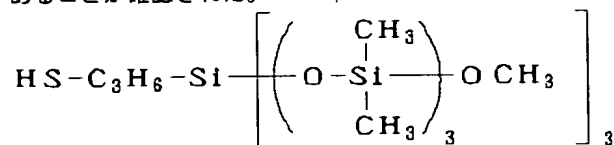
合成例4で使用した γ -メタクリロキシプロピルトリメトキシシランに代えて γ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン140.7g、1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7-オクタメチルシクロテトラシロキサン159.3gを使用した以外、合成例4と同様に反応を行った。これにより屈折率1.431の生成物を得た。また、この生成物の¹H-NMRの分析では次のようなスペクトルが観測された： δ (ppm) 0.3 (18H, Si-CH₃), 0.7 (2H, Si-CH₂), 1.7 (1H, HS-), 1.9 (2H, Si-C-CH₂), 2.5 (2H, Si-C-CH₂), 3.8 (9H, Si-OCH₃)。上記生成物のGPCによる分析を行ったところ、スチレン換算で数平均分子量400のピークを示した。以上のことから、得られた生成物は次の平均構造を有するシロキサン（以下、シロキサンEと記載する）であることが確認された。



【0037】合成例6

合成例4で使用した γ -メタクリロキシプロピルトリメ

トキシシランに代えて γ -メルカプトプロピルトリメトキシシラン68.2g、1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7-オクタメチルシクロテトラシロキサン231.8gを使用した以外、合成例4と同様に反応を行った。これにより屈折率1.413の生成物を得た。また、この生成物の¹H-NMRの分析では次のようなスペクトルが観測された： δ (ppm) 0.3 (54H, Si-CH₃), 0.7 (2H, Si-CH₂), 1.7 (1H, HS-), 1.9 (2H, Si-C-CH₂), 2.5 (2H, Si-C-CH₂), 3.8 (9H, Si-OCH₃)。上記生成物のGPCによる分析を行ったところ、スチレン換算で数平均分子量850のピークを示した。以上のことから、得られた生成物は次の平均構造を有するシロキサン（以下、シロキサンFと記載する）であることが確認された。

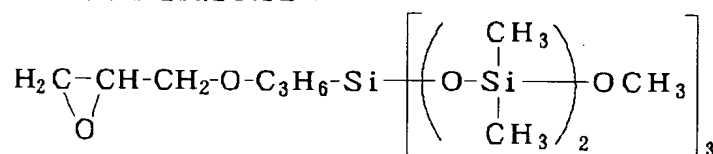


【0038】合成例7

攪拌機、温度計、還流冷却器、窒素導入管を備えた1リットルの4つ口セパラブルフラスコに、トリメトキシシラン107.8g、1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7-

オクタメチルシクロテトラシロキサン392. 2 g、硫酸15 gを加え、常温にて7時間、攪拌した。炭酸水素ナトリウムを75 g加えて攪拌し、減圧下で未反応物を除去した後、濾過し、中間体を得た。次に攪拌機、温度計、還流冷却器、滴下ロートを備えた500ミリリットルの4つロセパラブルフラスコに、上記中間体241. 6 g、トルエン90 gを加え、80℃に加熱した。80℃になったのを確認し、塩化白金酸1 ppmを加え、アリルグリシジルエーテル58. 4 gを0. 5時間かけて滴下し、その後、80℃で4時間攪拌した。次に反応溶液を冷却し、炭酸水素ナトリウムを1. 5 g加えて中和し、減圧下で未反応物および溶剤を除去し、濾過した。このようにして得られた生成物の物性値を測定したところ、

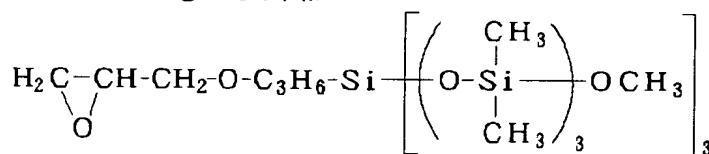
屈折率1. 416であった。また、この生成物の¹H-NMRの分析では次のようなスペクトルが観測された： δ (ppm) 0. 3 (36H, Si-CH₃) , 0. 7 (2H, Si-CH₂) , 1. 7 (2H, Si-C-CH₂) , 2. 7 (2H, O-CH₂-C-C-Si) , 3. 2 (2H, C-O-CH₂) , 3. 6 (3H, O-CH₂-CH) , 3. 8 (9H, O-CH₃)。上記生成物のGPCによる分析を行ったところ、スチレン換算で数平均分子量700のピークを示した。以上のことから、得られた生成物は次の平均構造を有するシロキサン（以下、シロキサンGと記載する）であることが確認された。



【0039】合成例8

攪拌機、温度計、還流冷却器、窒素導入管を備えた1リットルの4つロセパラブルフラスコに、トリメトキシシラン77. 4 g、1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7-オクタメチルシクロテトラシロキサン422. 6 g、硫酸15 gを加え、常温にて7時間、攪拌した。炭酸水素ナトリウムを75 g加えて攪拌し、減圧下で未反応物を除去した後、濾過し、中間体を得た。次に攪拌機、温度計、還流冷却器、滴下ロートを備えた500ミリリットルの4つロセパラブルフラスコに、上記中間体255. 6 g、トルエン90 gを加え、80℃に加熱した。80℃になったのを確認し、塩化白金酸1 ppmを加え、アリルグリシジルエーテル44. 4 gを0. 5時間かけて滴下し、その後、80℃で4時間攪拌した。次に反応溶液を冷却し、炭酸水素ナトリウムを1. 5 g加えて中和し、減圧下で未反応物および溶剤を除去し、濾過した。

このようにして得られた生成物の物性値を測定したところ、屈折率1. 411であった。また、この生成物の¹H-NMRの分析では次のようなスペクトルが観測された： δ (ppm) 0. 3 (54H, Si-CH₃) , 0. 7 (2H, Si-CH₂) , 1. 7 (2H, Si-C-CH₂) , 2. 7 (2H, O-CH₂-C-C-Si) , 3. 2 (2H, C-O-CH₂-) , 3. 6 (3H, O-CH₂-CH-) , 3. 8 (9H, -O-CH₃)。上記生成物のGPCによる分析を行ったところ、スチレン換算で数平均分子量900のピークを示した。以上のことから、得られた生成物は次の平均構造を有するシロキサン（以下、シロキサンHと記載する）であることが確認された。



【0040】合成例9

合成例1で使用したフラスコに、N-(β -アミノエチル)- γ -アミノプロピルトリメトキシシラン99. 9 g、1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7-オクタメチルシクロテトラシロキサン200. 1 g、テトラメチルアンモニウムヒドロキシド0. 48 gを加え、120℃で5時間攪拌した。次に150℃に加熱し触媒を分解した後、減圧下加熱して未反応成分を除去した。得られた生成物の物性値を測定したところ、25℃での粘度25 mm²/s (cSt)、屈折率1. 425、アミノ当量321 (理論値334)であった。上記生成物のGPCによる分析を行ったところ、スチレン換算で数平均分子量

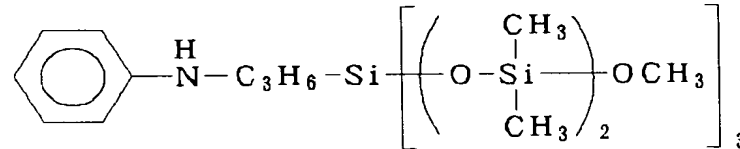
600のピークを示した。

【0041】合成例10

合成例1で使用したフラスコに、 γ -フェニルアミノプロピルトリメトキシシラン109. 4 g、1, 1, 3, 3, 5, 5, 7, 7-オクタメチルシクロテトラシロキサン190. 6 g、ナトリウムメトキシド0. 48 gを加え、150℃で5時間攪拌した。50℃以下に冷却後、氷酢酸を0. 24 g加えて1時間さらに攪拌し、次いで減圧加熱下で未反応物を除去した後、濾過を行い生成物を得た。得られた生成物の物性値を測定したところ、25℃での粘度26 mm²/s (cSt)、屈折率1. 485、アミノ当量689 (理論値699)であつ

た。また、この生成物の¹H-NMRの分析では次のようなスペクトルが観測された： δ (ppm) 0.3 (36H, Si-CH₃)、0.7 (2H, Si-CH₂)、1.9 (2H, Si-C-CH₂)、3.0 (2H, N-CH₂)、3.8 (9H, Si-OC H₃)、7.2-7.5 (5H, Ar-H)。上記生成

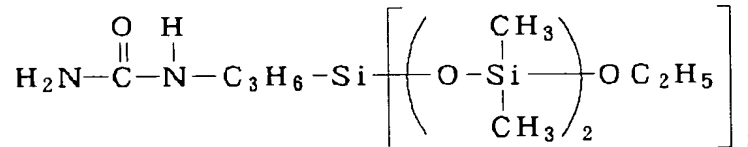
物のGPCによる分析を行ったところ、スチレン換算で数平均分子量650のピークを示した。以上のことから、得られた生成物は次の平均構造を有するポリシロキサン（以下、シロキサンIと記載する）であることが確認された。



【0042】合成例11

合成例1で使用したフラスコに、 γ -ウレイドプロピルトリエトキシシランの50重量%メタノール溶液163.0g、1,1,3,3,5,5,7,7-オクタメチルシクロテトラシロキサン137.0g、ナトリウムメトキシド0.48gを加え、150℃で5時間攪拌した。50℃以下に冷却後、氷酢酸を0.24g加えて1時間さらに攪拌し、次いで減圧加熱下で未反応物を除去した後、濾過を行い生成物を得た。得られた生成物の物

性値を測定したところ、25℃での粘度30mm²/s (cSt)、屈折率1.405、アミノ当量692 (理論値708)であった。また、この生成物の¹H-NMRの分析では次のようなスペクトルが観測された： δ (ppm) 0.3 (36H, Si-CH₃)、0.7 (2H, Si-CH₂)、1.9 (2H, Si-C-CH₂)、2.0 (9H, O-C-CH₃)、3.4 (2H, N-CH₂)、4.0 (6H, Si-OCH₂)。上記生成物のGPCによる分析を行ったところ、スチレン換算で数平均分子量680のピークを示した。以上のことから、得られた生成物は次の平均構造を有するポリシロキサン（以下、シロキサンJと記載する）であることが確認された。



【0043】実施例1

合成樹脂としてポリフェニレンサルファイド樹脂（以下、PPS樹脂と記載する）、無機材料として炭酸カルシウムを使用して複合材料を作成し、その物性を評価した。具体的にはPPS樹脂（呉羽化学製）100重量部、平均繊維径0.8 μ m、平均繊維長25 μ m、平均アスペクト比31の炭酸カルシウム（丸尾カルシウム製）および各種表面処理剤を下の表1に示す配合比で加え、ブレンダーで2分間混合した後、これを押出機でシリンダー温度310℃にて溶融混練して押出し、PPS

樹脂のペレットを作成した。次いで、このペレットを用いて1mm ϕ ×10mmLのキャピラリーにより、温度310℃、剪断速度1200/s ϕ cにおける溶融粘度を測定した。さらに、射出成形機でシリンダー温度320℃、金型温度150℃でASTM D638に準拠した引張試験片、およびASTM D790に準拠した曲げ試験片を成形し、引張強度および曲げ強度を測定した。評価結果は表1に記載した。

【0044】

【表1】

	実施例		比較例		
	1-1	1-2	1-1	1-2	1-3
配合比率（重量部）					
PPS樹脂	100	100	100	100	100
炭酸カルシウム	50	50	50	50	50
シロキサンA	1	—	—	—	—
シロキサンG	—	1	—	—	—
A-1100*1	—	—	1	—	—
A-187*2	—	—	—	1	—
物性値					
溶融粘度 (Pa·s)	67.5	66.5	77	78.5	79

引張強度 (MPa)	135	128	110	106	105
曲げ強度 (MPa)	134	126	120	117	115

*1 γ-アミノプロピルトリエトキシシラン

*2 γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン

【0045】実施例2

合成樹脂として不飽和ポリエステル樹脂、無機材料としてガラスパウダーを使用して複合材料を作成し、その物性を評価した。具体的には不飽和ポリエステル樹脂（日本触媒製、商品名G-227）100重量部、表2に示す配合の表面処理剤で予め処理した、または未処理のガラスパウダー（フェロー製、商品名フリット3134）40重量部、メチルエチルケトンパーオキサイド（以下、MEKPOと記載する）1.5重量部およびナフテン酸コバルト1.5重量部を加え、十分混合し、減圧脱

泡した後、型枠に注入し、室温で12時間硬化させ、さらに60℃にて6時間硬化させ、型から外し、5cm×5cmの大きさの試験片を作成した。該試験片を用いてJIS A5705に準拠して、煮沸を12サイクル行い、煮沸前後の試験片の光透過率の評価をJIS A5705に準拠して行った。さらに、曲げ強さの測定をASTM D638に準拠して行った。評価結果は表2に記載した。

【0046】

【表2】

	実施例		比較例		
	2-1	2-2	2-1	2-2	2-3
配合比率（重量部）					
不飽和ポリエステル樹脂	100	100	100	100	100
ガラスパウダー	40	40	40	40	40
MEKPO	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
ナフテン酸コバルト	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
シロキサンC	1	—	—	—	—
シロキサンD	—	1	—	—	—
A-171*1	—	—	1	—	—
A-174*2	—	—	—	1	—
物性値					
光透過率（煮沸前、%）	74	79	58	60	54
光透過率（煮沸後、%）	69	75	45	51	10
光透過率残存率（%）	93.2	94.9	77.6	85.0	18.5
曲げ強さ（kg/cm ² ）	1300	1500	1100	1200	900

*1 ビニルトリメトキシシラン

*2 γ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン

【0047】実施例3

（A）合成樹脂磁石として6-ナイロン、無機材料としてストロンチウムフェライト粉末を使用して複合材料を作成し、その物性を評価した。具体的には6-ナイロン（宇部興産製）23重量部に、表3に示す配合の表面処理剤で予め処理した、または未処理のストロンチウムフェライト粉末（平均粒径1.20μm）200重量部を加え、十分攪拌混合し、その後、二軸混練押出機を用いて250℃で混練し、ペレット状の合成樹脂磁石材料を得た。この得られた合成樹脂磁石成形材料を加熱溶融し

て10kOeの磁場を印加した後、冷却固化して特性評価用の試験片を作成し、磁気および機械的強度を測定した。合成樹脂磁石材料のMI（メルトインデックス）の測定は275℃、荷重15.4kgの条件で測定を行った。得られた合成樹脂磁石成形体の磁気特性はBHトレースを用いて外部磁場140kOeで測定した。曲げ強さの測定をASTM D630に準拠して行った。評価結果は表3に記載した。

【0048】

【表3】

	実施例		比較例	
	3-1	3-2	3-1	3-2

配合比率（重量部）

ストロンチウムフェライト	200	200	200	200
6-ナイロン	23	23	23	23
シロキサンB	1.3	0.7	—	—
A-1122*1	—	0.6	1.3	—

物性値

残留磁束密度Br (kG)	2.90	2.92	2.31	2.57
保持力bHc (Oe)	2.81	2.83	1.91	2.38
最大エネルギー積 (BH) _{max} *2	2.01	2.02	1.47	1.68
曲げ強さ (kg/cm ²)	1450	1300	550	1100
MI (g/10min)	102	101	10	62

*1 N- (β-アミノエチル) -γ-アミノプロピルトリメトキシシラン

*2 単位はMG Oe

【0049】 (B) 表面改質された磁性体粉末、合成樹脂磁石材料および合成樹脂磁石についての別の実施例を次に示す。平均粒径1.1 μmのストロンチウムフェライト粉末89.5重量%をヘンシェルミキサーで攪拌しながらシロキサンA（実施例3-3）、シロキサンI（実施例3-4）またはシロキサンJ（実施例3-5） 20 0.5重量%を添加し混合した。それぞれのストロンチウムフェライト粉末とシロキサンとの混合物を乾燥機にて110℃で1時間加熱乾燥して、表面改質された磁性体粉末を得た。その後、再びヘンシェルミキサーにてこの表面改質された磁性体粉末に6-ナイロン10.0重量%を添加しさらに混合した。この混合物を2軸押出機を用いて250℃で混練押出し、ペレット状の合成樹脂磁石材料を得た。この合成樹脂磁石材料を加熱溶融して

10kOeの磁場を印加した後、冷却固化して特性評価用の試験片を作成し、磁気特性および機械的強度を測定した。測定結果を合成樹脂磁石材料のメルトインデックス (MI) と共に下の表4に示した。比較のために、上記においてシロキサンA、IまたはJの代わりにγ-アミノプロピルトリエトキシシラン0.5重量%用い、そしてストロンチウムフェライト粉末88.6重量%および6-ナイロン10.9重量%を配合した以外は上記と同様に試験片を成形し、各種特性値を測定した（比較例3-3）。測定結果を合成樹脂磁石材料のMIと共に下の表4に示した。

【0050】

【表4】

	実施例			比較例
	3-3	3-4	3-5	3-3
残留磁束密度Br *1	2.86	2.77	2.87	2.53
保持力bHc *1	2.75	2.65	2.76	2.37
最大エネルギー積 (BH) _{max} *1	1.98	1.89	1.95	1.65
曲げ強さ (kg/cm ²) *2	1320	1380	1440	1080
MI (g/10min) *3	93	97	108	51

*1 いずれも磁気特性を示す物性値であり、BHトレーサーを用いて外部磁場140kOeで測定した。単位は残留磁束密度BrがkG、保持力bHcがOe、そして最大エネルギー積 (BH)_{max} がMG Oeである。

*2 曲げ強度はASTM D630に従って測定した。単位はkg/cm² である。

*3 MI (メルトインデックス) は275℃、荷重15.4kgの条件で測定した。単位はg/10分である。

【0051】 実施例4

合成樹脂としてエポキシ樹脂、無機材料として石英粉を使用して複合材料を作成し、その物性を評価した。具体的にはエポキシ樹脂 (BAKELITE製、商品名ERL-2774) 180重量部に、表5に示す配合の表面処理剤で

予め処理した、または未処理の石英粉100重量部、無水テトラヒドロフタル酸65重量部、ベンジルジメチルアミン1重量部を加え、十分混合し、120℃で16時間硬化させ、さらに180℃にて1時間硬化させ、試験片を作成した。このASTM D150に基づいて作成

した試験片を8時間煮沸前後の誘電率および誘電正接を測定した。評価結果は表5に記載した。

【0052】

【表5】

	実施例		比較例	
	4-1	4-2	4-1	4-2
配合比率（重量部）				
エポキシ樹脂	180	180	180	180
石英粉	100	100	100	100
無水テトラヒドロフタル酸	65	65	65	65
ベンジルジメチルアミン	1	1	1	1
シロキサンG	1	—	—	—
シロキサンH	—	1	—	—
A-187 ^{*1}	—	—	1	—
物性値				
誘電率（初期）	3.39	3.40	3.40	3.39
誘電率（8時間煮沸後）	3.43	3.42	6.72	14.60
誘電正接（初期）	0.014	0.015	0.016	0.017
誘電正接（8時間煮沸後）	0.021	0.019	0.157	0.305

^{*1} γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン

【0053】実施例5

合成樹脂としてスチレン-ブタジエンゴム共重合ゴム（以下、SBRと記載する）およびブタジエンゴム（以下、BRと記載する）、無機材料として沈降シリカを使用して複合材料を作成し、その物性を評価した。具体的にはSBR1712を100重量部、BRを30重量部、沈降シリカを70重量部、各種添加剤および各種表

面処理剤を表6に示す配合で加え（表中の配合比率は全て重量部で示す）、バンバリーミキサーとロールを用いて混合混練し、コンパウンドを得た。該コンパウンドをそのtC90と同じ時間だけ160℃でプレス加硫し、物性を評価した。評価結果は表6に記載した。

【0054】

【表6】

	実施例					比較例				
	5-1	5-2	5-3	5-4	5-5	5-1	5-2	5-3	5-4	5-5
配合比率（重量部）										
SBR1712	100	100	100	100	100	100	100	100	100	100
BR	30	30	30	30	30	30	30	30	30	30
沈降シリカ	70	70	70	70	70	70	70	70	70	70
APO ^{*1}	10	10	10	10	10	10	10	10	10	10
酸化亜鉛	4	4	4	4	4	4	4	4	4	4
添加剤 ^{*2}	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2	1.2
DOTG ^{*3}	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5	2.5
硫黄	1.6	1.6	1.6	1.6	1.6	1.6	1.6	1.6	1.6	1.6
ステアリン酸	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
シロキサンE	1.4	—	0.7	0.7	0.7	—	—	—	—	—
シロキサンF	—	1.4	—	—	—	—	—	—	—	—
A-1289 ^{*4}	—	—	0.7	—	—	1.4	—	—	—	—
A-1589 ^{*5}	—	—	—	0.7	—	—	1.4	—	—	—
A-162 ^{*6}	—	—	—	—	0.7	—	—	—	—	—
A-189 ^{*7}	—	—	—	—	—	—	—	1.4	—	—
物性値										
・ムーニー粘度 ^{*8}	50	47	45	40	46	48	42	62	62	62

・ ムーニー									
スコーチ*9	18	20	21	23	23	23	25	13	26
・ ショアーA	52	50	52	51	51	53	51	52	50
・ 300%									
モジュラス*10	5.0	4.9	5.9	5.8	5.3	5.7	5.4	4.1	1.9

- *1 芳香族プロセスオイル
 *2 N-tert-ブチルベンゾトリアゾール-2-サルフェナミド
 *3 ジオルトトリクロルジアニジン
 *4 ビス(3-トリエトキシシリルプロピル)テトラスルファン
 *5 ビス(3-トリエトキシシリルプロピル)ジスルファン
 *6 メチルトリエトキシシラン
 *7 γ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン
 *8 100℃でのムーニー粘度ML1+4
 *9 135℃でのムーニースコッチ, t5 (min)
 *10 単位MPa

【0055】

【発明の効果】本発明における特定構造を有するシロキサンまたはその加水分解生成物は、シリカや磁性粉等の無機材料だけでなく、従来のシランカップリング剤ではその性能を発揮しにくかった炭酸カルシウム等の無機材料に対しても、表面改質効果を十分に付与し得るものである。また、上記シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物とを併用するか、それらの加水分解生成物を使用することにより、無機材料に対する、より高い表面改質効果が得られる。このように、上記シロキサン、該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物またはそれらの加水分解生成物で表面処理された本発明の無機材料は、無機材料の種類に関係なく表面改質が十分になされているため、有機材料への充填率および分散性が高く、その結果、加工成形性が向上し、しかも得られる複合材料の靱性等の機械的特性や耐水性を改善することができる。従って、本発明の特定構造を有するシロキサン、該シロキサンと加水分解性基含有シラン化合物またはそれらの加水分解生成物を使用した複合材料はFRP、FRT、人工大理石、合成樹脂磁石、レジンコンクリート、シェルモールド、エラストマー、磁気テープ等をはじめ

とする各種複合材料、特に合成樹脂磁石、ゴム組成物、封止材等に対する複雑化、多様化、機能化、過酷化してきている要求に対応できるものであり、非常に有用であり、かつ好適である。特に、本発明のシロキサンまたはその加水分解生成物を用いて表面処理(表面改質)された磁性体粉末は合成樹脂中への分散性に優れ、しかも合成樹脂中への高充填化が可能であり、さらに合成樹脂中への配向率を向上させることができるものであり、従来要望されていた機械的強度および成形加工性に優れた合成樹脂磁石のための磁性体粉末として適している。また、特定のシロキサンまたはその加水分解生成物、磁性体粉末および合成樹脂とからなる本発明の合成樹脂磁石材料は、最大エネルギー積等の磁気特性が優れ、かつ曲げ強度等の機械的特性にも優れるばかりでなく、成形加工時におけるメルトインデックスが高く、流動性に優れているため、成形加工性が非常に高い。このため、本発明の合成樹脂磁石材料から成形される合成樹脂磁石は高い成形加工性で得られ、しかも磁気特性および機械的強度に優れており、小型化、軽量化、高精度化が求められているエレクトロニクス分野に幅広く使用できる。

フロントページの続き

(51) Int. Cl. 7

識別記号

FI

テマコード(参考)

C08L 83/07

C08L 83/07

83/08

83/08

101/00

101/00

C09K 3/10

C09K 3/10

Z

H01C 1/02

H01C 1/02

M

H01F 1/113

H01F 1/113

(72) 発明者 佐々木 久
神奈川県横浜市港南区最戸 1-17-2-
202